

**Mehrphotonenionisation  
von Natriumatomen:  
Der Einfluß des dynamischen Stark-Effekts  
auf die Winkelverteilung  
der Photoelektronen**

**Wolfgang Ohnesorge**





Digitized by the Internet Archive  
in 2026

[https://archive.org/details/IA41554819\\_0070](https://archive.org/details/IA41554819_0070)



Mehrphotonenionisation von Natriumatomen :  
Der Einfluß des dynamischen Stark-Effekts auf die Winkelverteilung  
der Photoelektronen

Dissertation der Fakultät für Physik  
der  
Ludwig-Maximilians-Universität  
München

vorgelegt von  
Wolfgang Ohnesorge  
aus Göttingen

München, den 24. April 1986

1. Gutachter : Prof. Dr. H. Walther
2. Gutachter : Prof. Dr. G. Graw

Tag der mündlichen Prüfung : 26. Juni 1986

## Zusammenfassung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden die Winkelverteilungen von Photoelektronen untersucht, die durch Mehrphotonenionisation von Atomen erzeugt worden sind. Um eine effektive Mehrphotonenionisation zu erreichen, sind die erforderlichen Laserintensitäten so hoch, daß sie bei den Atomen zusätzlich einen dynamischen Stark-Effekt hervorrufen. Ziel der vorliegenden Arbeit war es, anhand der Winkelverteilungen den Einfluß dieses Effekts auf die Mehrphotonenionisation zu studieren.

Zu diesem Zweck wurde ein Natriumatomstrahl mit dem Licht eines durchstimmbaren Farbstofflasers bestrahlt. Die Laserwellenlänge wurde so abgestimmt, daß durch einen Zweiphotonenübergang aus dem 3S-Grundzustand der 4D-Zustand angeregt wurde. Diese Wellenlänge unterscheidet sich wenig von der des Einphotonenübergangs in den 3P-Zustand. Daher wirkt dieser als quasiresonanter Zwischenzustand und erhöht den Wirkungsquerschnitt für den Zweiphotonenübergang in den 4D-Zustand. Die Absorption eines dritten Photons führt dann zur Ionisation.

Die emittierten Photoelektronen wurden unter rechtem Winkel zum Laserstrahl und zum Atomstrahl mit einem Channeltron-Elektronenvervielfacher nachgewiesen. Durch Drehen der Polarisationsrichtung des linear polarisierten Laserstrahls konnte die Winkelverteilung in der Ebene senkrecht zum Laserstrahl aufgenommen werden. Um die Feinstruktur des 4D-Zustands und die Hyperfeinstruktur des 3S-Grundzustands aufzulösen, ist ein schmalbandiger frequenzstabiler Laser erforderlich. Zugleich müssen für eine meßbare Ionisation Intensitäten verwendet werden, wie sie nur von gepulsten Lasern geliefert werden können. Um beides zu erreichen, wurde der Strahl eines frequenzstabilisierten Farbstoff-Ringlasers gepulst nachverstärkt. Außerdem wurden auch Vergleichsmessungen mit einem in gleicher Weise nachverstärkten Strahl eines synchron gepumpten Pikosekunden-Farbstofflasers gemacht.

Im Experiment wurde die Frequenz des Ringlasers auf einen Feinstrukturzustand des  $4D$ -Dubletts abgestimmt und zunächst die für diesen Übergang charakteristische Winkelverteilung bei geringen Laserintensitäten aufgenommen. Dann wurde bei festgehaltener Laserfrequenz die Intensität erhöht, um den Einfluß der Intensität auf die Winkelverteilungen zu untersuchen.

Die Ergebnisse zeigen, beispielsweise bei der Abstimmung des Lasers auf den  $4^2D_{5/2}$ -Zustand, wie die Winkelverteilung bei einer Intensitätserhöhung ihre ursprünglich charakteristische Form verliert, dann die typische Form für den  $4^2D_{3/2}$ -Zustand annimmt, um schließlich bei noch höheren Intensitäten eine Form zu erhalten, die keinen Einfluß der Feinstruktur mehr erkennen läßt. Genau diese letzte Form wurde auch für Winkelverteilungen aus der Ionisation mit Pikosekunden-Laserpulsen ermittelt, bei denen aufgrund der Energie-Zeit-Unschärfe die Feinstruktur prinzipiell nicht aufgelöst werden kann.

Diese Ergebnisse werden mit Berechnungen anderer Autoren zu dem vorliegenden Experiment verglichen. Diese Berechnungen geben genau die beobachteten Änderungen der Winkelverteilungen bei Variation der Laserintensität wieder. Kleinere Diskrepanzen bestehen lediglich in den Koeffizienten der Winkelverteilungen und in der absoluten Intensitätskala. Sie sind darauf zurückzuführen, daß eine genaue Absolutmessung der Laserintensität schwer ist, und daß in den Rechnungen nicht alle experimentellen Parameter (wie zum Beispiel die zeitliche Struktur der Laserpulse) hinreichend berücksichtigt werden können. Für die prinzipiellen Ergebnisse der Arbeit sind diese Abweichungen jedoch nicht bedeutsam.

Die vorliegende Arbeit demonstriert den Einfluß des dynamischen Stark-Effekts auf resonante Zwischenzustände in der Mehrphotonenionisation und zeigt damit, daß mit der Messung der Winkelverteilungen der Photoelektronen sehr detaillierte Untersuchungen der Mehrphotonenionisation möglich sind, wie sie mit der Messung der absoluten Ionisationsrate nicht ausgeführt werden können.

## Inhalt :

### Zusammenfassung

|                                                                                          |    |
|------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| 1. Einleitung                                                                            | 1  |
| 2. Mehrphotonenionisation                                                                | 5  |
| 2.1. Resonante Mehrphotonenionisation                                                    | 5  |
| 2.2. Nichtresonante Mehrphotonenionisation                                               | 6  |
| 2.3. Sättigung und Einfluß der Photonenstatistik in der Mehrphotonenionisation           | 7  |
| 3. Der Stark-Effekt                                                                      | 10 |
| 3.1. Der Stark-Effekt in konstanten Feldern                                              | 10 |
| 3.2. Der dynamische Stark-Effekt                                                         | 11 |
| 4. Winkelverteilungen von Photoelektronen                                                | 16 |
| 4.1. Winkelverteilungen bei Einphotonenionisation                                        | 16 |
| 4.2. Winkelverteilungen bei Mehrphotonenionisation                                       | 21 |
| 5. Zielsetzung der Arbeit                                                                | 27 |
| 6. Theoretische Überlegungen zum Experiment                                              | 30 |
| 6.1. Berechnung der Winkelverteilungen                                                   | 31 |
| 6.2. Berücksichtigung der Dynamik                                                        | 34 |
| 6.3. Der dynamische Stark-Effekt                                                         | 38 |
| 6.4. Theoretische Ergebnisse                                                             | 40 |
| 7. Experiment                                                                            | 45 |
| 7.1. Lasersystem                                                                         | 45 |
| 7.2. Fluoreszenzmessungen                                                                | 48 |
| 7.3. Pikosekunden-Lasersystem                                                            | 49 |
| 7.4. Apparatur                                                                           | 52 |
| 7.5. Steuerung und Datenaufnahme                                                         | 53 |
| 7.6. Datenverarbeitung und Auswertung                                                    | 54 |
| 7.7. Ergebnisse                                                                          | 55 |
| 8. Diskussion                                                                            | 61 |
| 8.1. Winkelverteilungen bei niedrigen Intensitäten                                       | 61 |
| 8.2. Intensitätsabhängige Winkelverteilungen                                             | 63 |
| 8.3. Winkelverteilungen mit Pikosekunden-Laserpulsen                                     | 69 |
| 8.4. Messung der Winkelverteilungen im Vergleich zur Messung der totalen Ionisationsrate | 71 |
| Schluß                                                                                   | 73 |
| Literaturnachweis                                                                        | 75 |



## 1. Einleitung

Mit der Erfindung des Lasers ist es möglich geworden, in der Spektroskopie Phänomene zu untersuchen, die mit anderen herkömmlichen Lichtquellen nicht zugänglich waren. Dabei spielt nicht nur die hohe Monochromasie des Laserlichts eine Rolle, sondern auch seine hohe Leistung. Das Licht von gepulsten Lasern kann elektrische Feldstärken erreichen, die vergleichbar mit inneratomaren Feldstärken sind oder diese noch übersteigen. Die erzielbaren Intensitäten reichen aus, daß die bestrahlten Atome oder Moleküle mit mehreren Photonen gleichzeitig wechselwirken können. Bei solchen Mehrphotonenprozessen können Zustände angeregt werden, deren Energie ein mehrfaches der Energie  $h\nu$  der einzelnen Photonen beträgt. Darüber hinaus kann die Mehrphotonenionisation auftreten, bei der im Gegensatz zum einfachen Photoeffekt mehrere Photonen gleichzeitig absorbiert werden und gemeinsam die notwendige Ionisationsenergie aufbringen. Die Wirkungsquerschnitte sind so klein, daß die Mehrphotonenprozesse im optischen Spektralbereich erst mit Lasern systematisch untersucht werden konnten.

Kramers und Heisenberg<sup>1)</sup> zogen bei der theoretischen Behandlung der Dispersion 1925 erstmals die Möglichkeit von Mehrphotonenprozessen in Betracht. Die ersten Berechnungen einer Zweiphotonenabsorption und -emission hat Frau Göppert-Mayer<sup>2)</sup> 1931 durchgeführt. Im Jahr 1950 veröffentlichten Hughes und Grabner<sup>3)</sup> die ersten experimentellen Beobachtungen einer Mehrphotonenabsorption im Hochfrequenzbereich.

Seit der ersten experimentellen Untersuchung der Mehrphotonenionisation von Voronov und Delone<sup>4)</sup> 1965 ist die experimentelle Technik sehr weit verbessert worden. Mit der Entwicklung von Farbstofflasern ist es möglich geworden, Atome und Moleküle über mehrere resonante Zwischenschritte anzuregen und zu ionisieren, was die erforderlichen Laserintensitäten um einiges vermindert. In jüngster Zeit ist es gelungen, die zeitlichen und spektralen Eigenschaften des Laserlichtes zu kontrollieren. Dies ist in Hinblick auf die Rolle wichtig, die die Photonstatistik bei den Mehrphotonenprozessen spielt. Auf der anderen Seite haben die experimentellen Fortschritte auch Möglichkeiten zur An-

wendung der Mehrphotonenionisation eröffnet. So erlaubt es die hohe Frequenzabhängigkeit der resonanten Mehrphotonenprozesse, bestimmte Atom- oder Molekülsorten, sogar bestimmte Isotope eines Elements selektiv anzuregen oder zu ionisieren. Es werden zur Zeit verschiedene Laser-Verfahren zur Spurenanalytik und zur Isotopentrennung untersucht.

Gleichzeitig hat die theoretische und rechnerische Behandlung dieser Vorgänge Fortschritte gemacht, so daß es heute möglich ist, über einfache qualitative Angaben hinaus schon sehr detaillierte und quantitative Vergleiche anzustellen, obwohl die vollständige Beschreibung der Mehrphotonenprozesse recht komplex ist. Wegen der hohen Laserintensitäten müssen die Auswirkungen verschiedener zusätzlicher Effekte berücksichtigt werden; zu diesen gehören der dynamische Stark-Effekt, die Sättigung atomarer Übergänge und die Abhängigkeit der atomaren Übergangswahrscheinlichkeiten von der Photonenstatistik des Laserlichts.

Atome oder Moleküle, die sich in einem konstanten elektrischen Feld befinden, zeigen den bekannten Stark-Effekt: Ihre Energiezustände werden verschoben und spalten auf. Es war einer der ersten Erfolge des Bohrschen Atommodells, daß mit ihm dieser Effekt richtig beschrieben werden konnte. Wenn Atome mit hochfrequenten elektromagnetischen Feldern wechselwirken, so zeigen sie eine ähnliche Verschiebung und Aufspaltung der Zustände - den dynamischen Stark-Effekt. Eine grobe qualitative Erklärung liefert das Bohrsche Atommodell für den Fall, daß die Frequenz des elektromagnetischen Feldes groß gegen die Umlauffrequenz des Elektrons ist: Im Wechselfeld des Lichts führt das Elektron neben seiner Grundschrwingung noch eine schnelle periodische Bewegung mit der Frequenz des Lichts aus. Die zusätzliche Energie dieser Bewegung ist ein Maß für die Energieverschiebung des betrachteten Zustands<sup>6)</sup>. Im Rahmen der quantenmechanischen Störungsrechnung wird der dynamische Stark-Effekt durch Kopplung des betrachteten Zustands an alle anderen Zustände des Atoms beschrieben und erfordert die Kenntnis der zugehörigen Matrixelemente. Linienverschiebungen und -aufspaltungen sind auch im Bereich optischer Frequenzen vielfach experimentell und theoretisch untersucht worden<sup>7)</sup>.

In den meisten Experimenten zur Mehrphotonenionisation wird nur die totale Ionisationsrate und damit der totale Wirkungsquerschnitt der Ionisation gemessen. Die absolute Bestimmung des totalen Wirkungsquerschnitts ist allerdings häufig durch Effekte der Laserintensität und durch die Unsicherheit in der absoluten Zahl der bestrahlten Atome erschwert. Über den Ionisationsprozeß läßt sich noch mehr Information gewinnen, wenn man die Eigenschaften der Photoelektronen näher untersucht: So kann deren Energiespektrum Aufschluß über die Lage von Zwischenzuständen und über den Anregungszustand des Ionenrumpfs geben. Aus einer Messung der Spinpolarisation der Photoelektronen läßt sich auf die räumliche Orientierung des Atoms während der Anregung und auf die des zurückbleibenden Ionenrumpfs schließen. Die Winkelverteilung der Photoelektronen liefert den differentiellen Wirkungsquerschnitt der Mehrphotonenionisation. Dieser enthält Information über die Ladungsverteilung in den beteiligten Zwischenzuständen und über die Übergangsamplituden ins Kontinuum, die aus dem totalen Wirkungsquerschnitt nicht gewonnen werden können. So sind in den bisherigen Experimenten zu Winkelverteilungen aus der Mehrphotonenionisation die relativen Amplituden und Phasen der Übergänge ins Kontinuum bestimmt worden<sup>8)-11)</sup>. Es wurden Interferenzen der Zwischenzustände beobachtet<sup>8),11),12)</sup>, bei Mehrelektronensystemen die Wirkung der Autoionisation und der Konfigurationswechselwirkung der Zwischenzustände<sup>13),14)</sup>. Bei höher angeregten Zwischenzuständen kommen die Bahnradien in die Größenordnung der Wellenlänge des ionisierenden Lichts, so daß die Dipolnäherung zur Beschreibung nicht mehr ausreicht und Quadrupolübergänge ihre Spuren in den Winkelverteilungen hinterlassen<sup>15)</sup>. Hohe Laserintensitäten führen zu Kontinuumsübergängen, die ebenfalls in den Winkelverteilungen nachgewiesen werden können<sup>16)-18)</sup>, und zu Raman-Kopplungen zwischen resonanten Zwischenzuständen<sup>19)</sup>, die auch nur in den Winkelverteilungen beobachtbar sind.

Auch der dynamische Stark-Effekt sollte in der resonanten Mehrphotonenionisation die Zwischenzustände beeinflussen. Dieser Einfluß wäre in einer Messung der totalen Ionisationsrate kaum zu erkennen<sup>20)</sup>, während er sich hingegen in den Winkelverteilungen der Photoelektronen bemerkbar machen sollte.

Ziel dieses Experiments ist es, zu zeigen, daß sich der dynamische Stark-Effekt in der Mehrphotonenionisation anhand der Winkelverteilungen der Photoelektronen beobachten läßt. Darüber hinaus soll untersucht werden, inwieweit sich das Verhalten der Winkelverteilungen unter dem Einfluß des dynamischen Stark-Effekts theoretisch beschreiben und vorhersagen läßt.

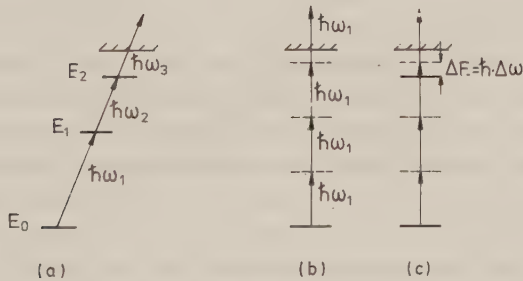
## 2. Mehrphotonenionisation

Die mit Lasern erreichbaren Lichtintensitäten sind so hoch, daß Atome oder Moleküle gleichzeitig mehrere Photonen absorbieren können. Dadurch wird es möglich, Atome zu ionisieren, deren Ionisationsenergie größer als die Energie eines einzelnen Photons ist. Solche Prozesse werden als Mehrphotonenionisation bezeichnet.

Die Absorption mehrerer Photonen läßt sich als schrittweise Anregung von Zwischenzuständen innerhalb kürzester Zeit verstehen. Die Anforderungen an die Lichtintensität ergeben sich aus der Bedingung, daß innerhalb der Lebensdauer  $\tau$  des jeweiligen Zwischenzustands das nächste Photon absorbiert werden muß, um einen Übergang in den nächsten Zwischenzustand zu induzieren. Je nach Art der Zwischenzustände unterscheidet man resonante und nichtresonante Mehrphotonenionisation.

### 2.1. Resonante Mehrphotonenionisation

In Abb. 1a ist das Schema einer resonanten Dreiphotonenionisation gezeigt. Die Frequenzen der Photonen  $\omega_1$  und  $\omega_2$  sind so gewählt, daß



**Abb.1 :** Schema der Mehrphotonenionisation. (a) resonante Dreiphotonenionisation, (b) nichtresonante Vierphotonenionisation. (c) Um den Energiesatz nicht zu verletzen, muß das nächste Photon aufgrund der Unschärferelation innerhalb der Zeit  $\tau \approx 1/\Delta\omega$  absorbiert werden (siehe Text).

sie den jeweiligen Energieabständen der beteiligten Zwischenzustände entsprechen. Für eine typische Lebensdauer von  $\tau \approx 10^{-8}$  s liegen die erforderlichen Intensitäten in der Größenordnung von  $I \approx 1$  kW/cm<sup>2</sup>.

## 2.2. Nichtresonante Mehrphotonenionisation

Abb. 1b zeigt das Schema einer nichtresonanten Vierphotonenionisation. Häufig werden die gestrichelt gezeichneten Zwischenzustände als virtuelle Zustände bezeichnet. Soll die Zeit  $\tau$ , innerhalb der ein weiteres Photon absorbiert wird, abgeschätzt werden, ist es günstiger, diese Zwischenzustände als eine nichtresonante schwache Anregung von realen Zuständen anzusehen (siehe Abb. 1c): Nach der Unschärfebeziehung  $\Delta E \cdot \tau \approx h$  kann diese Anregung nur während der Zeit  $\tau$  bestehen ohne den Energiesatz zu verletzen. (Dieses Bild liegt der Störungsrechnung für Mehrphotonenprozesse zugrunde, bei der die Kopplung an den virtuellen Zustand als Summe aller nichtresonanten Kopplungen an reale Zustände behandelt wird. In Abb. 1c ist nur ein realer Zustand gezeigt). Die Energiedifferenz  $\Delta E$  kann im Bereich optischer Frequenzen allerdings von der Größenordnung der Photonenenergie  $h\nu$  sein, so daß  $\tau \approx 1/\nu \approx 10^{-15}$  s beträgt. Entsprechend müssen die Intensitäten sehr hoch sein, damit innerhalb von  $\tau$  jeweils ein weiteres Photon absorbiert werden kann. Die Wahrscheinlichkeit für einen solchen Prozeß soll am Beispiel einer Zweiphotonenionisation abgeschätzt werden:

Die Einphotonen-Absorptionsrate wird durch den Wirkungsquerschnitt  $\sigma_1$  beschrieben:  $w_1 = \sigma_1 I$  (wobei  $I$  hier die Anzahl der Photonen pro Fläche und pro Zeit angibt, nicht wie sonst die Lichtleistung pro Fläche).  $\sigma_1$  ist ungefähr gleich der Fläche eines Bohrschen Atoms:  $\sigma_1 \approx a_0^2 \approx 10^{-17}$  cm<sup>2</sup> (Der erste Bohrsche Radius beträgt  $a_0 = 0,5 \cdot 10^{-8}$  cm). Für die Absorption eines zweiten Photons gilt wieder die gleiche Rate  $w_1$ , nur muß dieses Photon innerhalb der Zeit  $\tau \approx 10^{-15}$  s absorbiert werden:  $w_2 = w_1 \cdot \tau \cdot w_1$ . Also ergibt sich für die Zweiphotonen-Ionisationsrate:

$$w_2 = \sigma_1 I \tau \sigma_1 I = \sigma_2 I^2$$

Der Wirkungsquerschnitt für die Zweiphotonenionisation beträgt damit :  
 $\sigma_2 = \sigma_1^2 \cdot \tau \approx 10^{-49} \text{ cm}^4 \text{ s}$  . Analog dazu gilt für die Rate einer N-Photonenionisation :

$$w_N = \sigma_N I^N$$

mit dem verallgemeinerten Wirkungsquerschnitt :

$$\sigma_N = \sigma_1^N \tau^{N-1} \quad [ \text{cm}^2 \text{ s}^{N-1} ]$$

Die Intensitäten, die mit heutigen Lasern erzielt werden können, sind so hoch, daß in der Mehrphotonenionisation schon der Effekt beobachtet wurde, daß die emittierten Photoelektronen weitere Photonen absorbieren, noch ehe sie das Potential des Ionenrumpfes ganz verlassen haben<sup>21)-23)</sup>. Das Laserlicht induziert also noch weitere Übergänge im Kontinuum. Für die Photoelektronen, die über das Mindestmaß von N Photonen noch weitere M Photonen absorbiert haben, beträgt die Ionisationsrate in einfachen Fällen  $w = I^{N+M}$ .

### 2.3. Sättigung und Einfluß der Photonenstatistik in der Mehrphotonenionisation

Für die Berechnung von Übergangswahrscheinlichkeiten in zeitabhängiger Störungstheorie wird häufig angenommen, daß die Besetzung der angekoppelten Zustände gegenüber der Besetzung des Ausgangszustands vernachlässigt werden kann. Beispielsweise für Fermis Goldene Regel, nach der die Übergangswahrscheinlichkeit zeitlich konstant ist, ist dies vorausgesetzt.

Bei der resonanten Anregung von Atomen mit Laserlicht genügen aber schon vergleichsweise geringe Intensitäten, um eine starke Besetzung des oberen Zustands herbeizuführen. Aber auch bei Mehrphotonenübergängen ohne resonante Zwischenzustände können die Intensitäten gepulster Laser ausreichen, den oberen Zustand merklich zu besetzen oder den Übergang sogar zu sättigen.

Zur richtigen Behandlung der Wechselwirkung des Laserlichts mit dem Atom muß daher die Dynamik der Dichtematrix untersucht werden. Dies führt auf die optischen Bloch-Gleichungen, die die Zeitabhängigkeit der Dichtematrixelemente beschreiben. In deren Rahmen können alle Effekte behandelt werden, die durch die kohärente Kopplung der Zustände hervorgerufen werden. So führen die Besetzungen der gekoppelten Zustände Rabi-Oszillationen aus, deren Frequenz proportional zur Stärke der Kopplung ist. Wird die Kohärenz der Kopplung zerstört, etwa durch spontane Emission, durch Stöße oder durch die Linienbreite des Lichts, so gehen die Bloch-Gleichungen in Rategleichungen über. Bei starker Kopplung zwischen den Zuständen tritt dann eine Sättigung der Besetzungszahlen ein.

Bei Mehrphotonenprozessen hängt die Übergangsrate von der Photonstatistik der Lichtquelle ab. So erhöht sich bei einer nichtresonanten N-Photonenionisation die Ionisationsrate bei einem chaotischen Lichtfeld um den Faktor  $N!$  gegenüber der Ionisationsrate bei einem idealen kohärenten Feld, obwohl beide Lichtfelder im zeitlichen Mittel die gleiche Intensität haben. Dies hängt wieder damit zusammen, daß die N Photonen in sehr kurzer Zeit absorbiert werden müssen. Bei chaotischen Feldern tragen jeweils viele unabhängige Quellen zur Besetzung jeder betrachteten Mode des elektromagnetischen Feldes bei, die Photonen treten zeitlich stark gehäuft auf. Solche Felder werden zur Beschreibung von thermischen Lichtquellen, aber auch von gepulsten Lasern verwendet, bei denen viele Resonatormoden gleichzeitig inkohärent anschwingen. Ideal kohärente Felder besitzen nur eine Quelle je Feldmode, die zeitlichen Abstände der Photonen sind regelmäßiger.

Eine N-Photonenionisation kann als eine Messung der Intensitätskorrelation N-ter Ordnung betrachtet werden, die sich auch klassisch angeben läßt: Zu einem chaotischen Feld tragen in der klassischen Behandlung viele Oszillatoren mit unterschiedlichen Phasen zu einer Feldmode bei. Die komplexe Amplitude des Feldes zeigt in der komplexen Zahlenebene eine zeitliche Gauß-Verteilung, wie man sie von der räumlichen Verteilung der Teilchen bei der Brownschen Molekularbewegung kennt. Die daraus resultierende Intensitätskorrelation lautet<sup>24)</sup>:

$$\langle \bar{I}(t)^N \rangle = N! \bar{I}^N \quad (\bar{I} \text{ ist die über eine Schwingungsmode gemittelte}$$

Intensität). Im Gegensatz dazu gilt für ein rein kohärentes Feld, das klassisch durch eine Sinus-Schwingung mit fester Phase beschrieben wird:  $\langle \bar{I}(t)^N \rangle = \bar{I}^N$ . Demgemäß ist die Wahrscheinlichkeit für die N-Photonenabsorption um den Gewichtungsfaktor  $N!$  erhöht.

Dies bedeutet aber, daß sich die Kopplung bei Mehrphotonenübergängen zwischen zwei Zuständen je nach Photonenstatistik bei sonst gleichen Bedingungen erheblich unterscheiden kann. Entsprechend hängen auch der dynamische Stark-Effekt und die Sättigung des Übergangs von der Statistik des Lichtfeldes ab. Die Auswirkung der Laserlinienbreite und damit der statistischen Eigenschaften des Laserlichtes auf die Ionisationsrate, auf die Starkverschiebung und auf das Sättigungsverhalten sind mehrfach experimentell<sup>25)-27)</sup> untersucht worden.

### 3. Der Stark-Effekt

#### 3.1. Der Stark-Effekt in konstanten Feldern

1913 beobachtete Stark<sup>28)</sup>, daß in einem konstanten elektrischen Feld jede Linie der Balmerreihe des Wasserstoffs in verschiedene Komponenten aufspaltet. Diese und weitere Untersuchungen ergaben, daß unter dem Einfluß eines äußeren elektrischen Feldes die verschiedenen atomaren Unterzustände unterschiedlich verschoben werden, so daß die energetische Entartung dieser Zustände aufgehoben wird.

Diese Stark-Verschiebung resultiert aus einer zusätzlichen Energie  $W = -p \cdot F$  eines atomaren Dipols  $p$  im elektrischen Feld  $F$ . Da Atome kein eigenes elektrisches Dipolmoment besitzen, muß dieses vom Feld induziert werden:  $p = \alpha \cdot F$ . Die Energieverschiebung ist also proportional zu  $F^2$ , man spricht vom quadratischen Stark-Effekt.

Eine Ausnahme bilden die angeregten Zustände des Wasserstoffs, bei denen die Energieaufspaltung im elektrischen Feld linear mit der Feldstärke variiert. Auch sie besitzen kein permanentes Dipolmoment, können jedoch als Überlagerung von energetisch entarteten Zuständen mit festem Dipolmoment beschrieben werden. Im Feld wird ihre Entartung aufgehoben und ihre Energie je nach Stärke und Orientierung des Dipolmoments verschoben. Diese Zustände sind Eigenzustände des Hamiltonoperators in parabolischen Koordinaten und besitzen keine definierte Parität. Sie können als Superposition der im Wasserstoffatom entarteten Bahndrehimpulszustände, die aus der üblichen Separierung der Schrödingergleichung in sphärischen Koordinaten hervorgehen, dargestellt werden.

Quantenmechanisch wird  $W$  als zusätzliche Störung zum Hamiltonoperator  $\hat{H}_0$  des ungestörten Atoms betrachtet:  $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{W}$ . Linearer und quadratischer Stark-Effekt ergeben sich dann aus den Energiekorrekturen zum Zustand  $|i\rangle$  in erster und zweiter Ordnung:

$$\Delta E_i^{(1)} = \langle i | \hat{W} | i \rangle = \mu_{ii} \cdot \underline{F} \quad (3.1)$$

$$\Delta E_i^{(2)} = \sum_{i \neq j} \frac{|\mu_{ij} \cdot \underline{F}|^2}{E_i^0 - E_j^0} \quad (3.2)$$

Hierbei ist  $\mu_{ij} = \langle i | e \underline{r} | j \rangle$  das Matricelement des Dipoloperators  $e \underline{r}$ , die  $E_i^0$  sind die Energien der ungestörten Zustände. Für Zustände mit definierter Parität verschwindet mit  $\mu_{ii}=0$  der lineare Stark-Effekt.

Mit diesen Formeln läßt sich der Stark-Effekt für statische Felder und für niederfrequente Felder behandeln, deren Frequenz klein gegen atomare Übergangsfrequenzen ist.

### 3.2. Der dynamische Stark-Effekt

Ähnliche Linienverschiebungen und -aufspaltungen treten auf, wenn Atome oder Moleküle elektromagnetischen Feldern ausgesetzt sind, deren Frequenzen mit den Übergangsfrequenzen der Teilchen vergleichbar sind oder diese übersteigen. Dieser dynamische Stark-Effekt wurde zuerst von Autler und Townes im Radiowellenbereich beobachtet<sup>29)</sup>, später wurde er auch im Bereich optischer Frequenzen untersucht<sup>7)</sup>.

Für Feldfrequenzen, die wesentlich größer als die atomaren Frequenzen sind, läßt sich die Verschiebung von Energiezuständen im Bohrschen Atommodell erklären<sup>6)</sup> (siehe Abb. 2): Im elektrischen Wechselfeld  $F(t) = F_0 \cdot \cos \omega t$  führt das Elektron neben seiner langsamen Bahnbewegung noch eine schnelle Vibration mit der Frequenz  $\omega$  aus:

$$m \ddot{x} = e \cdot F_0 \cdot \cos \omega t$$

Die mittlere kinetische Energie dieser Vibration beträgt:

$$W_{kin} = \frac{1}{2} m \overline{\dot{x}^2} = \frac{e^2 F_0^2}{4 m \omega^2}$$

und liefert die quadratisch von  $F_0$  abhängige Energieverschiebung.

Dies ergibt eine intensitätsabhängige Frequenzverschiebung :

$$\Delta\nu = \frac{2 e^2}{4m\omega^2 c \epsilon_0 \hbar} I \quad \text{mit } I = \frac{1}{2} c \epsilon_0 F_0^2$$



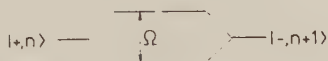
Abb. 2 : Klassische Erklärung des dynamischen Stark-Effekts für hohe Lichtfrequenzen. Im Lichtfeld führt das Elektron eine schnelle Vibration aus, deren kinetische Energie zu einer Frequenzverschiebung  $\Delta\nu$  in Abhängigkeit von der Lichtintensität  $I$  führt.

Der dynamische Stark-Effekt muß im allgemeinen in zeitabhängiger Störungstheorie behandelt werden. Einige allgemeine Beziehungen lassen sich aber aus einem zeitunabhängigen Modell gewinnen, in dem Atom und elektromagnetisches Feld als ein einziges Quantensystem betrachtet werden (in der Literatur oft als "dressed atom" bezeichnet). Im einfachsten Fall setzt sich das System aus einem Zweizustandsatom (mit den Zuständen  $|+\rangle$  und  $|-\rangle$ ) und einer Mode des Strahlungsfeldes mit der Frequenz  $\omega_L$  und der Besetzungszahl  $n$  zusammen. Zustände dieses Systems sind zum Beispiel :

$|+,n\rangle$  : Atom im angeregten Zustand  $|+\rangle$ ,  $n$  Photonen in der Mode des Strahlungsfeldes.

$|-,n+1\rangle$  : Atom im Grundzustand  $|-\rangle$ ,  $n+1$  Photonen in der Mode des Strahlungsfeldes.

Ist die Frequenz  $\omega_L$  des Lichtfeldes in Resonanz mit der atomaren Übergangsfrequenz  $\omega_0$ , so müßten diese beiden Zustände energetisch entartet sein. Gleichzeitig finden aber in diesem Fall Absorption und stimulierte Emission statt, die beiden Zustände sind also gekoppelt und ihre Wechselwirkung hebt die Entartung wieder auf (siehe Abb. 3).



**Abb. 3 :** Aufspaltung der entarteten Zustände  $|+,n\rangle$  und  $|-,n+1\rangle$  des "dressed atom" bei Einschluß der Wechselwirkung.

Die Aufspaltung  $\Omega$  ergibt sich aus den Energieverschiebungen  $\Delta E_{1,2} = \pm |\langle -|\hat{W}|+\rangle| = \pm 1/2 |\mu_{12} \cdot \underline{E}_0|$  ( $\underline{E}_0$  ist die Amplitude des Lichtfeldes). Dies Verhalten entspricht dem linearen Stark-Effekt bei einer mittleren konstanten Feldstärke  $F_0/2$  (Vgl.(3.1)). Diese Aufspaltung ist zum Beispiel in optischen Doppelresonanzexperimenten<sup>30)</sup> beobachtet worden. Betrachtet man nun die Energiezustände des Gesamtsystems für verschiedene Photonenzahlen und in Abhängigkeit der atomaren Übergangsfrequenz (bei festem  $\omega_L$ ), wie in Abb. 4a, so führt der Einschluß der Wechselwirkung zu folgendem Bild (siehe Abb. 4b). In der Nähe der Resonanz stoßen sich die entarteten Zustände ab; damit wird aber auch die Übergangsfrequenz  $\omega_0$  in dieser Umgebung verschoben.

Die Richtung wird aus Abb. 4b ersichtlich. Ist  $\omega_L$  größer als die ungestörte Frequenz  $\omega_0$ , so führt die Störung zu einer Verringerung von  $\omega_0$ , im umgekehrten Fall zu einer Erhöhung. Die atomare Übergangsfrequenz weicht der Frequenz des eingestrahlten Lichts also immer aus.

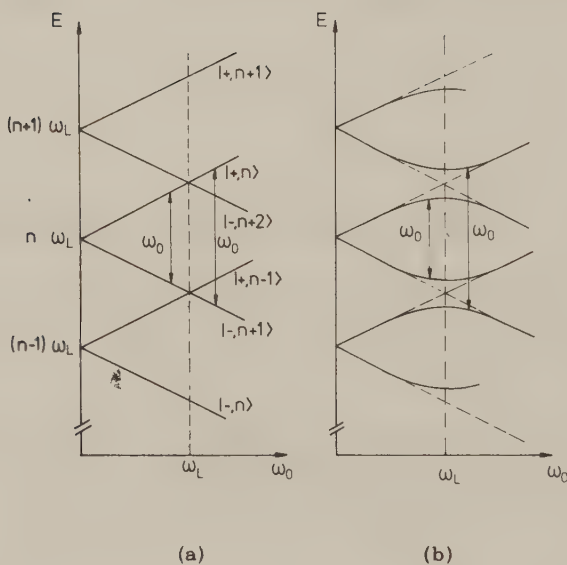


Abb. 4 : (a) Energiezustände des "dressed atom" mit der atomaren Übergangsfrequenz  $\omega_0$  und der Lichtfrequenz  $\omega_L$ . (b) Durch die Wechselwirkung werden die Zustände an den Kreuzungspunkten abgestoßen, daher verschieben sich die atomaren Übergangsfrequenzen  $\omega_0$  im Vergleich zum ungestörten Fall in (a).

Außerhalb der Resonanz sind die Zustände  $|+,n\rangle$  und  $|-,n+1\rangle$  nicht entartet. Genauso wie im statischen Fall ist  $\mu_{ii}=0$ , eine Energieverschiebung ergibt sich erst in zweiter Ordnung gemäß (3.2). Hier erstreckt sich die Summation über zwei virtuelle Zwischenzustände, die durch Absorption oder durch Emission eines Photons gekennzeichnet sind :

$$\Delta E_i^{(2)} = -\frac{1}{4} \frac{|\mu_{ij} \cdot \underline{E}_0|^2}{E_i^{(0)} - E_j^{(0)} - \hbar\omega} + \frac{1}{4} \frac{|\mu_{ij} \cdot \underline{E}_0|^2}{E_i^{(0)} - E_j^{(0)} + \hbar\omega} \quad \begin{matrix} (i \neq j) \\ (i, j=1,2) \end{matrix}$$

Dieses Modell führt für die dynamische Stark-Verschiebung der Zustände eines realen Atoms zu folgender Berechnung<sup>7)</sup> : Die Verschiebung jedes einzelnen Zustands  $|i\rangle$  ist die Folge seiner Kopplung durch das Lichtfeld an alle anderen Zustände  $|j\rangle$ . Die Summe dieser Verschiebungen ergibt sich zu :

$$\Delta E_i^{(2)} = \frac{1}{4} \sum_{j \neq i} \frac{|\mu_{ij} \cdot \underline{E}_0|^2}{E_i^{(0)} - E_j^{(0)} - \hbar\omega} + \frac{|\mu_{ij} \cdot \underline{E}_0|^2}{E_i^{(0)} - E_j^{(0)} + \hbar\omega} \quad (3.3)$$

#### 4. Winkelverteilung von Photoelektronen

##### 4.1. Winkelverteilungen bei Einphotonenionisation

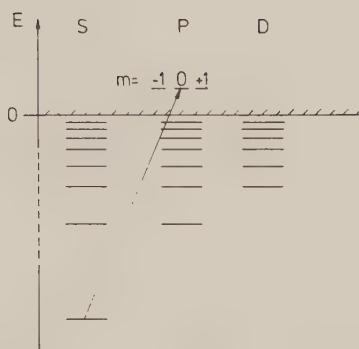
Die ersten detaillierten Messungen zur Winkelabhängigkeit von Photoelektronen wurden 1924 von Bothe durchgeführt<sup>31)</sup>, der verschiedene Moleküle mit Röntgenstrahlen ionisierte. Es zeigte sich, daß die Emissionsrate der Photoelektronen unter einem spitzen Winkel gegenüber der Richtung der ionisierenden Strahlung ein Maximum besitzt. Der Winkel ist umso kleiner, je größer die Energie der Strahlung ist. Spätere Messungen mit Licht wesentlich geringerer Energie zeigten ebenfalls ein solches Maximum<sup>32)</sup>, das aber in diesem Bereich unabhängig von der Energie senkrecht zur Strahlungsrichtung beobachtet wird.

Diese Winkelabhängigkeit der Emission der Photoelektronen kommt dadurch zustande, daß das absorbierte Photon seinen Impuls und Drehimpuls auf das Elektron überträgt. Dieser Übertrag führt zu einer räumlichen Anisotropie in der Wellenfunktion des auslaufenden Photoelektrons.

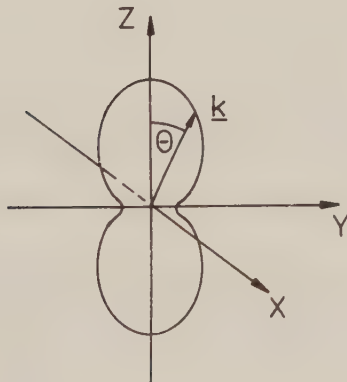
Im Bereich optischer Wellenlängen ist der Photonenimpuls so klein, daß sein Einfluß auf das Elektron vernachlässigt werden kann. Im folgenden wird daher nur die Auswirkung des Drehimpulsübertrags behandelt. Anhand eines einfachen Beispiels soll zunächst das Zustandekommen der Anisotropie plausibel gemacht werden :

Ein Atom im S-Zustand werde mit linear polarisiertem Licht photoionisiert. Die Dipolauswahlregeln für Betrag und Richtung des Drehimpulses ( $\Delta l = \pm 1$  und  $\Delta m = 0$ ) erlauben nur einen Übergang in einen Kontinuumszustand des Photoelektrons mit Drehimpuls  $l=1$  und magnetischer Quantenzahl  $m=0$ , dessen beide anderen Unterzustände mit  $m=\pm 1$  unbesetzt bleiben (siehe Abb. 5a). Dieser Zustand ist damit räumlich anisotrop; nur ein Drehimpulszustand, bei dem alle magnetischen Unterzustände besetzt sind, besitzt keine Richtungsabhängigkeit :

$$\sum_{m=-1}^{+1} |Y_{1m}(\theta, \phi)|^2 = \frac{2l+1}{2\pi} = \text{konst.} \quad (4.1)$$



**Abb. 5a :** Anisotropie im p-Kontinuumszustand nach der Einphotonenionisation eines S-Zustands mit linear polarisiertem Licht.



**Abb. 5b :** Winkelverteilung der Photoelektronen nach der Ionisation eines isotropen Ausgangszustands. Das Licht breitet sich in x-Richtung aus und ist linear in z-Richtung polarisiert. Die Variable  $\theta$  gibt den Winkel zwischen der Polarisationsrichtung des Lichts und der Beobachtungsrichtung der Photoelektronen an.

Der Erwartungswert für die Emissionsrichtung des Photoelektrons ist proportional zu  $|Y_{10}(\theta, \phi)|^2$  ( $= \cos^2 \theta$ ), wobei  $\theta$  und  $\phi$  den polaren und azimuthalen Winkel des Wellenvektors  $\underline{k}$  des Photoelektrons bezogen auf die Quantisierungsachse angeben. Die Quantisierungsachse ist hier die Polarisationsrichtung des Lichts.

Allgemein besitzt der differentielle Wirkungsquerschnitt für eine Einphotonenionisation eines isotropen gebundenen Zustands mit linear polarisiertem Licht die Form<sup>33)</sup> (siehe Abb. 5b):

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = P(\theta, \phi) = \alpha + \beta \cos^2 \theta \quad (4.2)$$

Im Hinblick auf spätere Rechnungen soll dies etwas ausführlicher dargelegt werden :

Die Winkelverteilung der Photoelektronen wird in Dipolnäherung durch das Betragsquadrat des Dipolmatrixelements zwischen dem gebundenen Zustand  $|i\rangle$  und dem Kontinuumszustand  $|f\rangle$  des Elektrons beschrieben :

$$P(\theta, \phi) \propto |\langle i | \underline{\hat{e}} \cdot \underline{\hat{r}} | f \rangle|^2$$

$\underline{e}$  ist der Polarisationsvektor des ionisierenden Lichts,  $\underline{r}$  der Ortsvektor des Elektrons. Für Licht, das linear in z-Richtung polarisiert ist, gilt :

$$P(\theta, \phi) \propto |\langle i | \hat{z} | f \rangle|^2 \quad (4.3)$$

In einem inversionssymmetrischen Potential ist der gebundene Zustand durch die Hauptquantenzahl  $n$ , die Bahndrehimpulsquantenzahl  $l$  und die magnetische Quantenzahl  $m$  charakterisiert :

$$|i\rangle = |n, l, m\rangle \quad (4.4)$$

Der Kontinuumszustand wird als Superposition einer einlaufenden Kugelwelle und einer auslaufenden ebenen Welle angesetzt und kann in Legendre-Polynome entwickelt werden, die wiederum in Eigenfunktionen des Drehimpulses dargestellt werden :

$$|f\rangle = 4\pi \sqrt{\frac{\pi}{2k}} \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^{+l} i^l e^{i\delta_l} Y_{lm}(\theta, \phi) |e, l, m\rangle \quad (4.5)$$

$\varepsilon$  ist die Energie des Kontinuumszustands,  $\delta_l$  ist die Phase des Kontinuumszustands mit dem Bahndrehimpuls  $l$ . Der Elektronenspin wird vorerst nicht berücksichtigt.

Geht man für die Berechnung der Winkelverteilung (4.3) von einem Ausgangszustand  $|i\rangle$  wie in (4.4) aus, so kann der Kontinuumszustand  $|f\rangle$  dank der Dipolauswahlregeln nur die Drehimpulse  $l \pm 1$  annehmen. Wird mit linear polarisiertem Licht ionisiert, so hat  $|f\rangle$  die gleiche magnetische Quantenzahl  $m$  wie  $|i\rangle$ . Daher reduziert sich die in (4.5) auftretende Summe auf zwei Terme.

$$\begin{aligned} P(\theta, \phi) &= |Y_{l+1,m}(\theta, \phi) a_{l+1} e^{i\delta_{l+1}} - Y_{l-1,m}(\theta, \phi) a_{l-1} e^{i\delta_{l-1}}|^2 \\ &= |Y_{l+1,m}(\theta, \phi) a_{l+1}|^2 + |Y_{l-1,m}(\theta, \phi) a_{l-1}|^2 \\ &\quad - 2 Y_{l+1,m}^*(\theta, \phi) Y_{l-1,m}(\theta, \phi) a_{l+1} a_{l-1} \cos(\delta_{l+1} - \delta_{l-1}) \end{aligned} \quad (4.6)$$

mit  $a_{l \pm 1} = \langle e, l \pm 1, m | \hat{z} | n, l, m \rangle$

Integration der Winkel liefert :

$$\begin{aligned} a_{l+1} &= \sqrt{\frac{(l+1)^2 - m^2}{(2l+1)(2l+3)}} A_{l+1} \\ a_{l-1} &= \sqrt{\frac{(l-1)^2 - m^2}{(2l-1)(2l+1)}} A_{l-1} \end{aligned}$$

Die  $A_{l \pm 1}$  sind die reinen Radialmatrixelemente, die die Stärke des jeweiligen Übergangs angeben.

Aus (4.6) geht hervor, daß die Winkelverteilungen auch von der Phasendifferenz  $\delta_{1+1} - \delta_{1-1}$  der beiden Kontinuumswellen abhängen. Diese Phasendifferenz kann experimentell nur aus dem differentiellen Wirkungsquerschnitt bestimmt werden.

Für das Weitere wird  $A_{1+1} \gg A_{1-1}$  angenommen. Diese Annahme ist experimentell selten gerechtfertigt, jedoch erleichtert sie die Bestimmung der Anisotropie, ohne deren Allgemeinheit zu beschränken. Die Winkelverteilung lautet dann :

$$P_m(\theta, \phi) \approx |Y_{1+1,m}(\theta, \phi)|^2 \frac{(1+1)^2 - m^2}{(21+1)(21+3)} A_{1+1}^2 \quad (4.7)$$

Diese Formel gibt die Winkelverteilung für die Photoionisation aus einem einzelnen magnetischen Unterzustand heraus an und ist wichtig für die Mehrphotonenionisation (s.d.), bei der virtuelle oder reale Zwischenzustände anisotrop besetzt werden können.

Ist der Zustand, der photoionisiert wird, jedoch isotrop, so muß über alle magnetischen Unterzustände summiert werden :

$$P(\theta, \phi) = \sum_{m=-1}^{+1} P_m(\theta, \phi) \quad (4.8)$$

Dazu ist die folgende Beziehung nützlich :

$$\sum_{m=-1}^{+1} m^{2N} |Y_{1m}(\theta, \phi)|^2 = \sum_{j=0}^N b_j \sin^{2j}(\theta) \quad (4.9)$$

(Die Koeffizienten  $a_j$  gehen aus  $2N$ -facher Differentiation des Additionstheorems für Kugelflächenfunktionen nach  $\phi$  hervor).

Mit  $N=1$  kann (4.8) ausgeführt werden und liefert nach Umformung die Gleichung (4.2) .

## 4.2. Winkelverteilungen bei Mehrphotonenionisation

Die Aufnahme von Winkelverteilungen aus einer Mehrphotonenionisation haben erstmals Edelstein *et al.*<sup>34)</sup> 1974 an der Zweiphotonenionisation von Titan-Atomen demonstriert. Die auftretenden Asymmetrien im differentiellen Wirkungsquerschnitt müssen durch Terme mit  $\cos^2\theta$  und  $\cos^4\theta$  beschrieben werden. Offenbar erhöht sich die Anisotropie in den Winkelverteilungen mit der Anzahl der absorbierten Photonen.

Anhand eines vereinfachten Beispiels soll dies begründet werden : Es wird angenommen, daß die Zweiphotonenionisation nur über einen Zwischenzustand  $|j\rangle$  erfolgt. Dann ergibt sich für die Winkelverteilung :

$$P(\theta, \phi) = |\langle f|\hat{z}|j\rangle \langle j|\hat{z}|i\rangle|^2 = |\langle f|\hat{z}|j\rangle|^2 |\langle j|\hat{z}|i\rangle|^2$$

Unter der weiteren Annahme, daß im wesentlichen nur Übergänge mit  $\Delta l = +1$  stattfinden, ist dann in Analogie zu (4.7) :

$$P(\theta, \phi) = |Y_{1+1,m}(\theta, \phi)|^2 \frac{(1+2)^2 - m^2}{(21+3)(21+5)} \frac{(1+1)^2 - m^2}{(21+1)(21+3)} A_{1+1}^2 B_{1+2}^2 \quad (4.10)$$

wobei  $A_{1+1}$  und  $B_{1+2}$  die Radialmatrixelemente von  $\langle j|\hat{z}|i\rangle$  und  $\langle f|\hat{z}|j\rangle$  sind.

Für die Winkelverteilung aus einem isotropen Zustand muß wieder wie in (4.8) über alle magnetischen Unterzustände des Grundzustands summiert werden. Diesmal erscheinen in (4.10) Terme in  $m^2$  und in  $m^4$ . Verwendet man wieder (4.9) mit  $N=1$  und mit  $N=2$ , so ergibt sich nach Umformungen :

$$P(\theta, \phi) = \alpha_0 + \alpha_2 \cos^2\theta + \alpha_4 \cos^4\theta \quad (4.11)$$

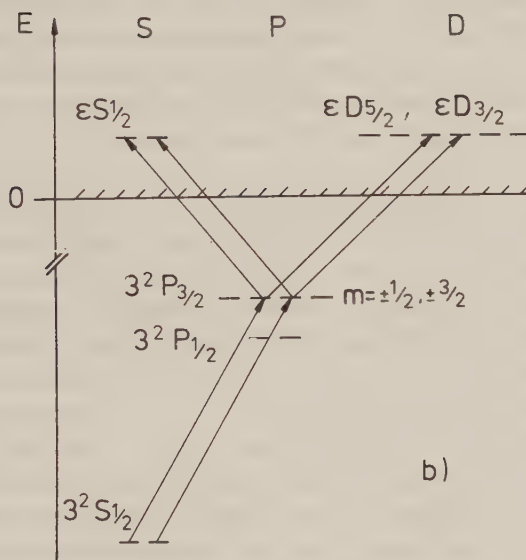
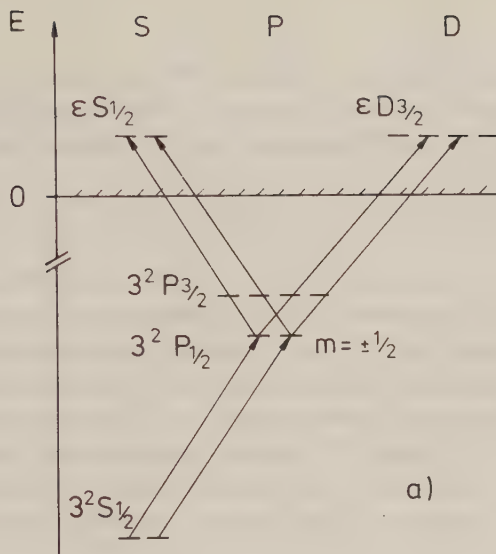
Die Winkelverteilung einer N-Photonenionisation aus einem isotropen Grundzustand mit linear polarisiertem Licht hat allgemein die Form :

$$P(\theta, \phi) = \sum_{j=0}^N \alpha_{2j} \cos^2 j(\theta) \quad (4.12)$$

Physikalisch betrachtet erhöht sich mit jeder Absorption eines weiteren Photons die Anisotropie der Wellenfunktion des Elektrons. Diese Interpretation ist unabhängig davon, ob noch Spin-Bahn-Kopplung oder Hyperfeinwechselwirkung vorhanden ist; Formel (4.12) bleibt auch in diesen Fällen gültig.

Es kann jedoch geschehen, daß der Koeffizient der stärksten Anisotropie  $\alpha_{2N}$  verschwindet, weil in einem der Absorptionsschritte die Anisotropie der Wellenfunktion nicht erhöht wurde. Als Beispiel sei die resonante stufenweise Zweiphotonenionisation von Natrium (Abb. 6) mit linear polarisiertem Licht betrachtet : Wird der  $3^2P_{1/2}$ -Zustand als resonanter Zwischenzustand besetzt, so bleibt er isotrop, da er die gleiche Anzahl von magnetischen Unterzuständen besitzt wie der Grundzustand (Abb. 6a). Die Winkelverteilung der Photoelektronen gleicht der einer Einphotonenionisation eines isotropen Ausgangszustands. Wird hingegen der  $3^2P_{3/2}$ -Zustand besetzt (Abb. 6b), so erhöht sich die Anisotropie in jedem Absorptionsschritt und die Winkelverteilung nimmt die Form (4.11) an. Man sieht, daß im ersten Fall nur der  $d_{3/2}$ -Kontinuumszustand anisotrop besetzt wird, im zweiten Fall aber auch der  $d_{5/2}$ -Kontinuumszustand mit höherer Anisotropie ( $m_j = \pm 3/2$  und  $m_j = \pm 5/2$  sind nicht besetzt). Das Beispiel zeigt, daß  $\alpha_{2N}$  nur in einer resonanten Mehrphotonenionisation verschwinden kann, dann nämlich, wenn zwei aufeinanderfolgende Zustände die gleiche Anzahl magnetischer Unterzustände haben.

Allerdings kann auch der Ionenrumpf nach der Photoionisation in einem angeregten anisotropen Zustand zurückbleiben und so die Anisotropie der Winkelverteilung reduzieren. Jedoch liegen bei den für diese Arbeit wichtigen Alkaliatomen die Anregungsenergien der Ionen so hoch, daß sie von sichtbarem Licht nicht angeregt werden können.



**Abb. 6 :** Stufenweise Zweiphotonenionisation von Natrium : Je nachdem ob (a)  $3P_{1/2}$  oder (b)  $3P_{3/2}$  resonanter Zwischenzustand ist, besitzt der Kontinuumszustand weniger oder mehr Anisotropie.

Bisher wurde angenommen, daß die Polarisation aller Photonen dieselbe ist. Werden verschiedene Laser verwendet, deren Polarisationen nicht parallel sind, so hängen die Winkelverteilungen auch vom Azimutwinkel  $\phi$  ab, die maximale Anisotropie wird aber weiterhin von der Anzahl der absorbierten Photonen bestimmt.

Das vorhergehende Beispiel hat gezeigt, daß die Winkelverteilungen Information über resonante Zwischenzustände enthalten. So haben beispielsweise Siegel et al.<sup>10)</sup> in der Zweiphotonenionisation von Neon aus den Winkelverteilungen der Photoelektronen Schlüsse auf die Polarisation des resonanten 3P-Zwischenzustandes gezogen. In anderen Experimenten ließ sich aus den Winkelverteilungen ablesen, welche der möglichen Zwischenzustände an der Photoionisation beteiligt waren<sup>9),14),35)</sup>. Dieser Aspekt spielt für die vorliegende Arbeit eine wesentliche Rolle.

Wie bereits vorher erwähnt, können in der Mehrphotonenionisation die verschiedenen Übergänge ins Kontinuum miteinander interferieren. Diese Interferenz der Wahrscheinlichkeitsamplituden für die unterschiedlichen Ionisationskanäle prägen sich der Winkelverteilung auf. Relative Phase sowie das Verhältnis dieser Amplituden können aus gemessenen Winkelverteilungen ermittelt werden<sup>8)-11)</sup>.

Dieser Aspekt wird noch deutlicher bei der Mehrphotonenionisation von Atomen mit mehreren Außenelektronen. Diese können sowohl durch direkte Übergänge ins Kontinuum als auch über die Anregung von autoionisierenden Zuständen photoionisiert werden. Resonante Zwischenzustände können der Konfigurationswechselwirkung unterliegen. Beide Effekte hinterlassen ihre Spuren in den Winkelverteilungen der Photoelektronen<sup>13),14)</sup>.

Mehrphotonenionisation wird meistens mit gepulsten Lasern durchgeführt, deren Pulsdauer oft kürzer ist als der Kehrwert der Frequenzen von Feinstruktur- oder Hyperfeinstrukturaufspaltungen der beteiligten Zwischenzustände. Diese Zustände können in solchen Fällen kohärent überlagert werden. Dies führt zu Interferenzerscheinungen, sogenannten "Quantum Beats", die sich in der zeitlichen Entwicklung der Winkelverteilung manifestieren, wenn der angeregte Zwischenzustand durch

einen zweiten verzögerten Laserpuls ionisiert wird<sup>8),11)</sup>. Derartige Quantum Beats in den Winkelverteilungen wurden von Leuchs et al.<sup>12)</sup> in der Photoionisation von Natrium-Atomen beobachtet. Bei diesem Experiment zeigt sich, daß die Messung der Winkelverteilung gegenüber der Messung der totalen Ionisationsrate leichter durchführbar ist.

Anhand von Winkelverteilungen der Photoelektronen läßt sich auch feststellen, inwieweit die Dipolnäherung zur Beschreibung der Übergangswahrscheinlichkeiten gerechtfertigt ist. Normalerweise sind die Dimensionen von Atomen im Grundzustand oder in niedrigen angeregten Zuständen klein gegen die Wellenlänge des sichtbaren Lichts; erst wenn mit Röntgenstrahlung ionisiert wird, gilt die Dipolnäherung nicht mehr. In diesem Fall muß der Impuls des Photons berücksichtigt werden. Zugleich ist der Energieübertrag auf das Elektron so groß, daß dessen Bewegung relativistisch behandelt werden muß. Anders verhält es sich mit hoch angeregten Zuständen; hier kommen die atomaren Dimensionen in die Größenordnung der Wellenlänge auch des sichtbaren Lichts, und der Photonenimpuls muß also berücksichtigt werden, ohne daß die Kinetik des Photoelektrons eine relativistische Behandlung erfordert. Leuchs et al.<sup>15)</sup> haben anhand der Photoionisation des Natrium  $13^2D_{3/2}$ -Zustands experimentell gezeigt, daß für die Ionisation auch Quadrupolübergänge ins Kontinuum einen Beitrag liefern. Die Winkelverteilung zeigt in diesem Fall eine Asymmetrie auch im Azimutwinkel  $\phi$ .

Die Intensitäten gepulster Laser sind so hoch, daß mit ihnen auch Mehrphotonenionisation höherer Ordnungen möglich ist. So haben Leuchs und Smith<sup>36)</sup> die Winkelverteilung aus der nichtresonanten Fünfphotonenionisation von Natrium gemessen und Fabre et al.<sup>16)</sup> die Sechsphotonenionisation von Xenon. Bei letztgenanntem Experiment waren die Laserintensitäten so hoch, daß von dem bereits freien Photoelektron noch ein weiteres siebentes Photon absorbiert wurde; diese Übergänge im Kontinuum zeigen sich sowohl in der unterschiedlichen Energie als auch in unterschiedlichen Winkelverteilungen der Photoelektronen. In jüngster Zeit sind die Winkelverteilungen von Photoelektronen nach Übergängen im Kontinuum noch mehrfach an Xenon<sup>17)</sup> und

Cäsium<sup>18)</sup> untersucht worden. Eine befriedigende theoretische Deutung der experimentellen Ergebnisse ist aufgrund der vielen möglichen Kanäle der Mehrphotonenprozesse bisher noch nicht möglich.

Die hohen Laserintensitäten führen auch dazu, daß andere Zwischenzustände als die resonanten durch Kopplung über virtuelle oder reale Zustände besetzt werden (siehe Abb. 7). Diese Raman-artige Kopplung tritt nur bei höheren Intensitäten auf und läßt sich experimentell in der Photoionisation wiederum nur aus den Winkelverteilungen ablesen<sup>19)</sup>.

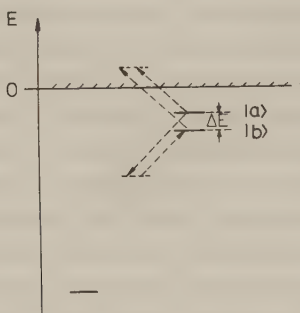


Abb. 7 : Raman-artige Kopplung zwischen benachbarten Zuständen  $|a\rangle$  und  $|b\rangle$  bei hohen Laserintensitäten. Diese nicht resonante Zweiphotonenkopplung kann bei hohen Intensitäten auftreten, wenn der Prozess in Zeiten  $\tau$  ablaufen kann, für die gilt:  $\Delta E \cdot \tau \approx \hbar$ .

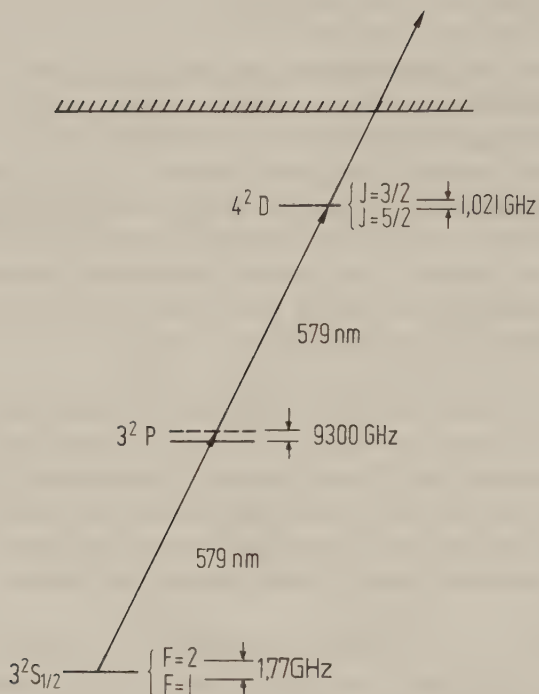
## 5. Zielsetzung der Arbeit

Wie in Kapitel 2 und 3 geschildert, wird die Mehrphotonenionisation bei intensiver Laserstrahlung von verschiedenen Effekten beeinflusst. Das Wechselspiel der verschiedenen Mehrphotonenprozesse macht eine detaillierte Untersuchung notwendig und interessant. Eine Messung nur des totalen Wirkungsquerschnitts der Photoionisation liefert aber nicht die vollständige Information über diese Prozesse. So kann beispielsweise die dynamische Stark-Verschiebung der resonanten Zwischenzustände durch die Laserstrahlung unter typischen experimentellen Bedingungen nicht in der absoluten Ionisationsrate nachgewiesen werden. Hingegen steht zu erwarten, daß in der Winkelverteilung der Photoelektronen die Auswirkungen solcher Prozesse zu beobachten sind.

Ziel dieser Arbeit ist es, an einem geeigneten atomaren Übergang die Auswirkung der Laserintensität auf die Mehrphotonenionisation mittels der Winkelverteilung der Photoelektronen zu untersuchen und dabei experimentelle Bedingungen zu schaffen, die einen zumindest qualitativen Vergleich mit der Theorie erlauben. Insbesondere sollen Auswirkungen des dynamischen Stark-Effektes demonstriert werden.

Ausgewählt wurde die Dreiphotonenionisation von Natrium, wobei als resonanter Zwischenzustand der 4D-Zustand mit einem Zweiphotonenübergang besetzt wird.

Der Natrium  $4^2D$ -Zustand hat zwei Feinstrukturkomponenten mit Gesamtdrehimpuls  $J=5/2$  und  $J=3/2$  mit einem Abstand von 1028 MHz <sup>37)</sup>. Da sich die Winkelverteilungen unterscheiden, je nachdem aus welchem der beiden Zwischenzustände das Atom ionisiert wird, ist es möglich, die Verschiebung dieser Zustände durch den dynamischen Stark-Effekt an der Form der Winkelverteilungen zu beobachten. Das Anregungsschema für dieses Experiment ist in Abb. 8 angegeben. Die Anregung des Zweiphotonenübergangs in einen der beiden 4D-Zustände erfolgt mit Licht der Wellenlänge  $\lambda = 579$  nm, ein drittes Photon dieser Wellenlänge ionisiert das angeregte Atom. Die Übergangswahrscheinlichkeit für die Zweiphotonenanregung ist durch die Nähe des virtuellen Zwischenzustands zum 3P-Zustand (Abstand  $\approx 300$  cm<sup>-1</sup>) überhöht.

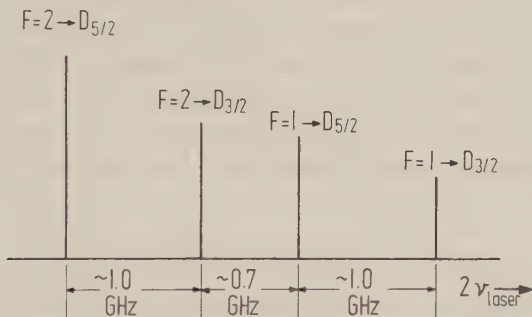


**Abb. 8 :** Schema der in dieser Arbeit untersuchten Dreiphotonenionisation von Natrium.

Es ist zu beachten, daß der  $3^2S_{1/2}$ -Grundzustand eine Hyperfein-  
strukturaufspaltung von 1770 MHz besitzt, so daß bei geeigneter Lini-  
enbreite des gepulsten Lasers insgesamt vier mögliche Übergänge an-  
gereggt werden können (siehe Abb. 9) :

- a)  $3^2S_{1/2}(F=2) \rightarrow 4^2D_{5/2}$
- b)  $3^2S_{1/2}(F=2) \rightarrow 4^2D_{3/2}$
- c)  $3^2S_{1/2}(F=1) \rightarrow 4^2D_{5/2}$
- d)  $3^2S_{1/2}(F=1) \rightarrow 4^2D_{3/2}$

Im Experiment wurden die Übergänge b) und c) untersucht. Außer-  
dem wurde der 4D-Zustand mit sehr kurzen Laserpulsen angeregt und  
ionisiert, deren Pulslänge von ungefähr 1 ps keine Auflösung dieser  
vier Übergänge erlaubt.



**Abb. 9 :** Die vier möglichen Linien des Zweiphotonenübergangs  
 $3S \rightarrow 4D$  in Natrium und ihre zu erwartenden Linien-  
stärken. F ist die Gesamtdrehimpulsquantenzahl der  
Hyperfeinstrukturzustände des 3S-Grundzustands.

## 6. Theoretische Überlegungen zum Experiment

In diesem Kapitel sollen die wesentlichen Punkte beschrieben werden, die in die Berechnungen eingehen, die zu dieser Arbeit durchgeführt wurden<sup>38)-40)</sup>. Zunächst wird gezeigt, wie die Winkelabhängigkeit der Photoelektronen für dieses Experiment berechnet wird. Danach wird die Dynamik des hier untersuchten Systems behandelt, wobei Sättigung, Rabi-Oszillationen und Stark-Verschiebung berücksichtigt werden.

### 6.1. Berechnung der Winkelverteilungen

#### a) Photoionisation aus dem 4D-Zustand

Das Prinzip der Berechnungen von Winkelverteilungen wurde in Kapitel 4 vorgestellt. Für den Fall, daß die Feinstruktur des 4D-Zustands nicht aufgelöst wird, kann die Winkelverteilung nach (4.3) berechnet werden. Dies ist dann sinnvoll, wenn die Frequenz des Laserlichts und die des atomaren Übergangs nicht in Resonanz sind, oder aber wenn die Linienbreite des Laserlichts zu groß ist und keine Auflösung gestattet.

Ausgangszustand ist der 4D-Zustand mit  $l=2$ , der durch einen Zwei-photonenübergang vom 3S-Grundzustand ( $m=0$ ) aus besetzt wird. Aufgrund der Auswahlregel  $\Delta m=0$  für linear polarisiertes Licht ist auch im 4D-Zustand nur der  $m=0$  Unterzustand besetzt. Die Dipolauswahlregel  $\Delta l=\pm 1$  erlaubt nur Übergänge in Kontinuumszustände mit  $l=1$  und  $l=3$ :

$$P(\theta, \phi) = | \langle 4D(m=0) | \hat{z} | \epsilon p(m=0) \rangle + \langle 4D(m=0) | \hat{z} | \epsilon f(m=0) \rangle |^2$$

Da die Übergangswahrscheinlichkeit in das p-Kontinuum wesentlich kleiner ist als die in das f-Kontinuum<sup>41)</sup>, wird die Winkelverteilung sehr ähnlich zu:

$$P(\theta, \phi) = | \langle 4D(m=0) | \hat{z} | \epsilon f(m=0) \rangle |^2 = | Y_{30}(\theta, \phi) |^2$$

b) Photoionisation aus dem  $4^2D_{3/2}$ -Zustand ( $m_j = \pm 1/2$ ) :

Wird die Feinstruktur des  $4D$ -Zustands aufgelöst, so muß in den Formeln aus Kapitel 4 noch die Spin-Bahn-Kopplung berücksichtigt werden.  $|i\rangle$  muß also durch die Hauptquantenzahl  $n$ , den Bahndrehimpuls  $l$ , die Spinquantenzahl  $s$ , den Gesamtdrehimpuls  $j$  und dessen magnetische Quantenzahl  $m_j$  gekennzeichnet sein :

$$|i\rangle = |n, l, s, j, m_j\rangle \quad (6.1)$$

Für Übergänge im Schema der Spin-Bahn-Kopplung muß auch der Kontinuumszustand  $|f\rangle$  in Eigenvektoren des Gesamtdrehimpulses  $j$  entwickelt werden :

$$|f\rangle = 4\pi \sqrt{\frac{\pi}{2k}} \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^{+l} i^l e^{i\delta_l} Y_{lm}^*(\theta, \phi) \sum_{j, m_j} C_{j, m_j} |\varepsilon, l, s, j, m_j\rangle \quad (6.2)$$

wobei  $C$  die Clebsch-Gordon-Koeffizienten sind.

$$C_{j, m_j} = (l, s, j, m_j | l, s, m_l, m_s)$$

Für die Berechnung der Winkelverteilungen bei Auflösung der Feinstruktur mit (6.1) lassen sich die in (6.2) auftretenden Summen ebenfalls auf wenige Terme reduzieren. Es ergibt sich für die Angabe von (4.3) für die Bedingungen des Experiments Folgendes .

Ausgangszustand ist der  $4^2D_{3/2}$ -Zustand, der durch einen Zweiphotonenübergang aus dem  $3^2S_{1/2}$ -Grundzustand besetzt wird. Aufgrund der Auswahlregel  $\Delta m = 0$  für linear polarisiertes Licht sind nur die  $m_j = \pm 1/2$  Unterzustände bevölkert. Wegen der Auswahlregeln  $\Delta l = \pm 1$ ,  $\Delta j = 0, \pm 1$  und  $\Delta m = 0$  sind nur Übergänge in die  $\varepsilon p_{1/2-}$ ,  $\varepsilon p_{3/2-}$  und  $\varepsilon f_{5/2-}$  Kontinuumszustände möglich :

$$P(\theta, \phi) = | \langle 4D_{3/2} | \hat{z} | \varepsilon p_{1/2-} \rangle + \langle 4D_{3/2} | \hat{z} | \varepsilon p_{3/2-} \rangle + \langle 4D_{3/2} | \hat{z} | \varepsilon f_{5/2-} \rangle |^2$$

Da für diesen Übergang die Kopplung an die  $\epsilon p$ -Kontinuumszustände wesentlich kleiner ist als die an den  $\epsilon f$ -Kontinuumszustand, nimmt die Winkelverteilung eine Form an, die in guter Näherung beschrieben wird durch :

$$P(\theta, \phi) \approx | \langle 4D_{3/2} | \hat{z} | \epsilon f_{5/2} \rangle |^2 \approx 3 |Y_{30}(\theta, \phi)|^2 + 4 |Y_{31}(\theta, \phi)|^2$$

Genauere Rechnungen, die alle drei Matrixelemente berücksichtigen, verlangen die Kenntnis der Radialmatrixelemente der Übergänge ins Kontinuum, die die relativen Beiträge der einzelnen Übergänge und deren Interferenzterme innerhalb des Betragsquadrates bestimmen. Die Interferenzterme enthalten im übrigen die Information über die relativen Phasen der Kontinuumswellenfunktionen. In den vollständigen Berechnungen zu diesem Experiment wurden Radialmatrixelemente verwendet, die aus einer Quantendefekttheorie stammen.

c) Photoionisation aus dem  $4^2D_{5/2}$ -Zustand ( $m_j = \pm 1/2$ ) :

in Analogie zu b) gilt hier :

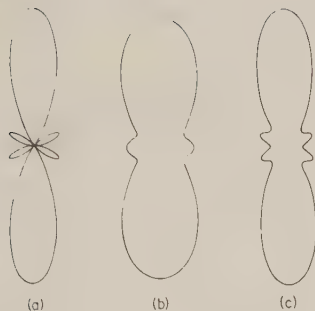
$$P(\theta, \phi) \approx | \langle 4D_{5/2} | \hat{z} | \epsilon p_{3/2} \rangle + \langle 4D_{5/2} | \hat{z} | \epsilon f_{5/2} \rangle + \langle 4D_{5/2} | \hat{z} | \epsilon f_{7/2} \rangle |^2$$

Entsprechend dem unter b) Gesagten ist die Winkelverteilung sehr ähnlich zu :

$$P(\theta, \phi) \approx | \langle 4D_{5/2} | \hat{z} | \epsilon f_{5/2} \rangle |^2 \approx 27 |Y_{30}(\theta, \phi)|^2 + 16 |Y_{31}(\theta, \phi)|^2$$

Es wurde dabei angenommen, daß die Radialmatrixelemente und relativen Phasen der Übergänge nach  $\epsilon f_{5/2}$  und  $\epsilon f_{7/2}$  sich nicht wesentlich unterscheiden.

Die Verteilung a) wird im Experiment bei sehr hohen Laserintensitäten oder bei Pikosekunden-Pulsen erwartet, die Verteilungen b) oder c) bei geringen und mittleren Intensitäten, wenn der Laser genau auf einen der Zweiphotonenübergänge abgestimmt ist. Abb. 10 zeigt die theoretischen Winkelverteilungen für diese drei Fälle.



**Abb. 10 :** Theoretische Winkelverteilungen des Übergangs  $3S \rightarrow 4D \rightarrow f$ -Kontinuum.

- (a) ohne Auflösung der Feinstruktur des  $4D$ -Zustands
- (b) Übergang über den  $4D_{3/2}$ -Zustand
- (c) Übergang über den  $4D_{5/2}$ -Zustand

Die Winkelverteilungen sind bisher als Summe über Betragsquadrate von Kugelflächenfunktionen angegeben worden. Sie lassen sich genauso als Summe über Legendre-Polynome, Summe über Potenzen von  $\cos\theta$  oder aber als Fourier-Summe darstellen :

$$P(\theta, \phi) = \sum_{n=0}^N a_{2n} \cos(2n\theta) \quad (6.3)$$

$N$  ist die Anzahl der absorbierten Photonen. Diese Darstellung hat den Vorteil, daß die Fourier-Funktionen  $\cos(2n\theta)$  auf dem beobachteten ein-dimensionalen Winkelintervall orthogonal sind und ihre Koeffizienten  $a_{2n}$  als unabhängige Parameter in einem Verfahren behandelt werden können, das die Funktion  $P(\theta)$  nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate an die Meßergebnisse anpaßt. Im folgenden beziehen sich alle Angaben auf die Darstellung (6.3).

Die Winkelverteilungen der eben behandelten Fälle gelten in dieser Form nur für eine Messung mit einem Detektor von unendlich scharfer Winkelauflösung. Berücksichtigt man die endlichen Abmessungen des in diesem Experiment verwendeten Detektors, die eine Winkelauflösung von  $\Delta\theta \approx 1/6$  rad ergeben, so lassen sich die zu erwartenden Winkelvertei-

lungen in der Darstellung (6.3) durch folgende Parameter angeben (Tabelle 1) :

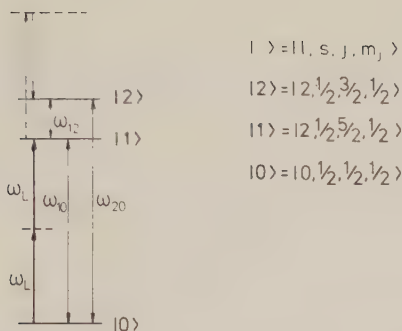
Tabelle 1 : Theoretische Koeffizienten  $a_{2n}$  der Fourierentwicklung der Winkelverteilungen (siehe Gleichung (6.3)) bei geringen Intensitäten unter Berücksichtigung der Detektorauflösung.

| Übergang                                                      | $a_2/a_0$ | $a_4/a_0$ | $a_6/a_0$ |
|---------------------------------------------------------------|-----------|-----------|-----------|
| $3^2S_{1/2} \rightarrow 4^2D_{3/2} \rightarrow \varepsilon f$ | 0,783     | 0,309     | 0,000     |
| $3^2S_{1/2} \rightarrow 4^2D_{5/2} \rightarrow \varepsilon f$ | 0,915     | 0,528     | 0,278     |

In die bisherigen Betrachtungen ist die Hyperfeinaufspaltung des Grundzustandes nicht eingegangen. Da im Experiment die Winkelverteilungen einmal aus dem  $3^2S_{1/2}(F=1)$ -Zustand und einmal aus dem  $3^2S_{1/2}(F=2)$ -Zustand aufgenommen wurden, ist es wichtig, die Auswirkung der Hyperfeinwechselwirkung des Grundzustandes zu untersuchen. Geltman und Leuchs<sup>40)</sup> haben diese in ihre Berechnungen eingeschlossen. Zunächst ergibt sich, daß keine direkte Zweiphotonenkopplung zwischen den beiden Hyperfeinstukturzuständen besteht, so daß anstelle eines Modells mit vier Zuständen weiterhin wie oben eines mit drei Zuständen verwendet werden kann, mit dem Unterschied, daß zwei solcher Dreizustandssysteme mit jeweils verschiedenen Grundzuständen untersucht werden müssen.

## 6.2. Berücksichtigung der Dynamik

Zur Erklärung des vorliegenden Experimentes müssen die Beiträge beider Feinstrukturzustände des 4D-Zwischenzustandes gleichzeitig berücksichtigt werden, und damit ihre Dynamik, also ihre zeitabhängige Besetzung und ihre Kopplung. Die verwendete Notation ist in Abb. 11 erklärt.



**Abb. 11 :** Zur Notation der Dynamik der hier wichtigen Mehrphotonenprozesse.

Die zu erwartenden Winkelverteilungen werden aus dem zeitlichen Mittel  $P(\theta, \phi)$  über die zeit- und richtungsabhängige Ionisationswahrscheinlichkeit  $J(\theta, \phi, t)$  errechnet :

$$P(\theta, \phi) = \int J(\theta, \phi, t) dt$$

$$J(\theta, \phi, t) = \Gamma_1(\theta, \phi) \rho_{11}(t) + \Gamma_2(\theta, \phi) \rho_{22}(t) + 2 \Omega_{12}''(\theta, \phi) \text{Re}[\rho_{12}(t)]$$

(Da im Experiment die Spinpolarisation des Photoelektrons nicht gemessen wird, ist hier bereits über beide Spinpolarisationen des Photoelektrons gemittelt worden.)

$\rho_{ij}$  sind die Elemente der Dichtematrix,  $\rho_{ii}$  gibt die Besetzung des Zustands  $|i\rangle$  wieder.  $\rho_{12}$  beschreibt die Kohärenz zwischen  $|1\rangle$  und  $|2\rangle$ , die schnelle zeitliche Änderung mit  $\omega_L$  wurde bereits absepariert ("slowly varying amplitude").

$\Gamma_i(\theta, \phi)$  ist die Kopplung des Zustands  $|i\rangle$  an den Kontinuumszustand  $|f\rangle$  und stellt eine richtungsabhängige Ionisationswahrscheinlichkeit dar. Sie hängt linear von der Intensität  $I$  ab, wie für einen Einphotonenprozeß zu erwarten ist, und ist proportional zur Winkelverteilung aus Formel (4.3) :  $\Gamma_i(\theta, \phi) \propto |\langle i | \hat{z} | f \rangle|^2 \cdot I$ . Die Ionisation führt zu einem Verlust in der Besetzung von  $|i\rangle$  und damit zu einer Dämpfung der Rabi-Oszillationen zwischen den gebundenen Zuständen.

$\Omega_{12}''(\theta, \phi)$  ist der Imaginärteil der kohärenten Kopplung zwischen den Zuständen  $|1\rangle$  und  $|2\rangle$ . Diese Kopplung wird im allgemeinen durch eine komplexe Rabi-Frequenz beschrieben:  $\Omega_{12} = \Omega_{12}' + i\Omega_{12}''$ . Der Imaginärteil gibt die Dämpfung der Kohärenz zwischen  $|1\rangle$  und  $|2\rangle$  an. Diese Raman-ähnliche Zweiphotonen-Kopplung ist ebenfalls proportional zur Intensität  $I$ :  $\Omega_{12}''(\theta, \phi) = \langle 2|\hat{z}|f\rangle\langle f|\hat{z}|1\rangle \cdot I$ .

Zur Berechnung von (6.4) muß die Zeitabhängigkeit der Dichtematrixelemente ermittelt werden. Die Dynamik des betrachteten Dreizustandssystems umfaßt sechs gekoppelte Differentialgleichungen. An vier davon soll gezeigt werden, welche Effekte in der Dynamik berücksichtigt werden.

a) Zeitabhängigkeit der Diagonalelemente der Dichtematrix. Stellvertretend sind  $\rho_{00}$  und  $\rho_{11}$  gewählt:

$$\frac{d}{dt} \rho_{00} = -\frac{1}{2} i (\Omega_{01} \rho_{10} - \text{c.c.}) - \frac{1}{2} i (\Omega_{02} \rho_{20} - \text{c.c.})$$

$$\frac{d}{dt} \rho_{11} = \frac{1}{2} i (\Omega_{01} \rho_{10} - \text{c.c.}) + \frac{1}{2} i (\Omega_{12}^* \rho_{12} - \text{c.c.}) - \Gamma_1 \rho_{11}$$

$\Gamma_1$  ist die winkelintegrierte Kopplung von  $|1\rangle$  an das Kontinuum (Vgl.  $\Gamma_i(\theta, \phi)$  in Formel (6.4)) und beschreibt die Dämpfung von  $\rho_{11}$  durch Ionisation. Die Kopplung hängt linear von der Intensität und vom Betragsquadrat des Radialmatrixelements des Übergangs ab.

$\Omega_{01}$  ist eine komplexe Rabi-Frequenz, die die Zweiphotonen-Kopplung zwischen  $|0\rangle$  und  $|1\rangle$  beschreibt, und hängt linear von der Intensität ab.

$\Omega_{12}$  ist die winkelintegrierte Zweiphotonen-Kopplung zwischen  $|1\rangle$  und  $|2\rangle$  (Vgl.  $\Omega_{12}'(\theta, \phi)$  in Formel (6.4)) und stellt eine komplexe Rabi-Frequenz dieser Raman-artigen Kopplung dar.

Die Gleichung für  $\rho_{22}$  geht aus der für  $\rho_{11}$  durch Vertauschen der Indizes 1 und 2 hervor.

b) Zeitabhängigkeit des Übergangsmatrixelements zwischen Grundzustand und angeregtem Zustand :

$$\left\{ \frac{d}{dt} - i \Delta_1 + \frac{1}{2} \Gamma_1 + 4b \frac{\beta^2}{\Delta_1^2 + \beta^2} \right\} \rho_{10} =$$

$$\frac{1}{2} i \Omega_{10} (\rho_{11} - \rho_{00}) - \frac{1}{2} i \Omega_{12} \rho_{20} + \frac{1}{2} i \Omega_{20} \rho_{12}$$

$\Delta_1$  beschreibt die Verstimmung zwischen der Laserfrequenz  $\omega_L$  und der Frequenz  $\omega_{10}$  des Zweiphotonenübergangs  $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$  unter Berücksichtigung der relativen Stark-Verschiebung  $S_{10}$  der Zustände ( $\Delta_1 = 2 \omega_L - \omega_{10} - S_{10}$ ).

$\Gamma_1$  beschreibt wie unter a) die Linienbreite des Übergangs.

Der letzte Term in der Klammer beschreibt den Einfluß der Linienbreite des Laserlichts. Zugrunde gelegt wurde das Phasendifusionsmodell. Bei diesem unterscheidet sich das Laserlicht von einem kohärenten Zustand mit fester Phase darin, daß aufgrund der spontanen Emission seine Phase wie in einer Diffusion alle Werte zwischen 0 und  $2\pi$  annimmt, während die Amplitude innerhalb eines kleinen Unscharfeintervalls konstant bleibt. Die Korrelationszeit für die Phasendifusion beträgt  $1/b$ , die Korrelationszeit für die zeitliche Ableitung der Phase beträgt  $1/\beta$ . Häufig wird der Fall  $\beta \rightarrow \infty$  angenommen. Die resultierende Linienform ist dann ein reines Lorentzprofil mit einer vollen Breite bei halber Höhe von  $2b$ . Bei Mehrphotonenprozessen führt dies aber dazu, daß die Frequenzanteile weit außerhalb der Linienmitte größere Beiträge liefern als häufig experimentell beobachtet wird. Daher muß hier ein endliches  $\beta$  ( $> b$ ) angenommen werden. Dies liefert eine Linienform, die um die Linienmitte herum ein Lorentzprofil hat, aber für Frequenzen, die sich um mehr als  $\beta$  von der Zentralfrequenz unterscheiden, schnell abfällt.

Für die Gleichung für  $\rho_{20}$  sind die Indizes 1 und 2 zu vertauschen.

- c) Zeitabhängigkeit des Übergangsmatrixelements zwischen den beiden angeregten Zuständen.

$$\left\{ \frac{d}{dt} + i (\omega_{12} + S_{12}) + \frac{1}{2} (\Gamma_1 + \Gamma_2) \right\} \rho_{12} = -\frac{1}{2} i \Omega_{10} \rho_{02} + \frac{1}{2} i \Omega_{02} \rho_{10} + \frac{1}{2} i (\Omega_{12}^* \rho_{11} - \Omega_{12} \rho_{22})$$

$S_{12}$  ist die relative Stark-Verschiebung von  $|1\rangle$  gegenüber  $|2\rangle$ .

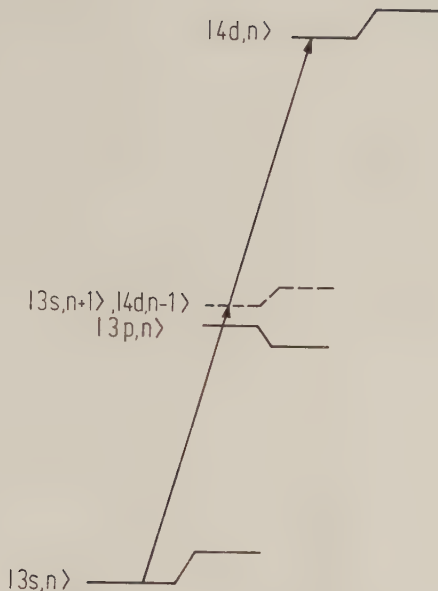
Zusammenfassend läßt sich sagen, daß die Dynamik der Dichtematrix Sättigungseffekte und Rabi-Oszillationen automatisch einschließt. Zusätzlich sind in der Betrachtung noch folgende Effekte enthalten :

- Die tatsächliche Verstimmung zwischen Lichtfrequenz und Übergangsfrequenz, wobei die Stark-Verschiebung nach Formel (3.1) eingeschlossen werden kann.
- Die atomare Linienverbreiterung unter dem Einfluß des Laserlichts, die von den  $\Gamma_i$  und den  $\Omega_{ij}$  bestimmt wird.
- Die Linienbreite des Laserlichts.
- Die Raman-artige Zweiphotonenkopplung zwischen den beiden benachbarten resonanten Zwischenzuständen.

### 6.3. Der dynamische Stark-Effekt

In die Dynamik der Dichtematrix geht auch die Stark-Verschiebung der beteiligten Zustände ein, die nach (3.3) durch die Kopplung an alle anderen Zustände berechnet werden muß.

Die hier untersuchten Zustände 3S und 4D des Natriums koppeln bei einer Wellenlänge  $\lambda = 579$  nm des Laserlichtes im wesentlichen an den 3P-Zustand (siehe Abb. 12). Die Verstimmung gegenüber diesem Zustand beträgt ungefähr  $300 \text{ cm}^{-1}$ .



**Abb. 12 :** Abstimmung der Laserfrequenz auf den ungestörten 4D-Zustand (links) und dynamische Stark-Verschiebung der Zustände unter dem Einfluß des Laserfeldes (rechts) im "dressed atom"-Bild. Die Verschiebung entsteht hauptsächlich durch die virtuelle Kopplung an den 3P-Zustand. Das Schema ist nicht maßstäblich.

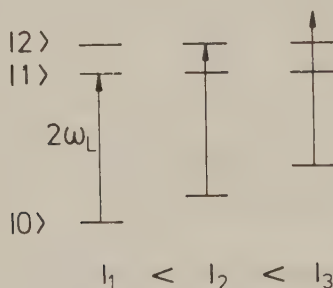
Der Beitrag der Kopplung an den 3P-Zustand macht nach den Berechnungen von Dixit und Lambropoulos<sup>38)</sup> ungefähr 75% der gesamten Stark-Verschiebung aus, die linear von der Intensität abhängt und wie folgt angegeben wird :

$$3^2S_{1/2} : \Delta\nu/I = 208,0 \text{ MHz/MWcm}^{-2}$$

$$4^2D_{3/2} : \Delta\nu/I = 27,9 \text{ MHz/MWcm}^{-2}$$

$$4^2D_{5/2} : \Delta\nu/I = 30,4 \text{ MHz/MWcm}^{-2}$$

Dieses Ergebnis hat für das Experiment folgende Konsequenz : Ist der Laser auf einen der Zweiphotonenübergänge  $3S \rightarrow 4D$  abgestimmt, so wird bei Erhöhung der Intensität der Energieabstand der Zustände in jedem Fall verringert; die Übergangsfrequenz des Atoms kann also mittels der Laserintensität durchgestimmt werden, während die Frequenz des Laserlichtes fest bleibt. Befindet sich diese Frequenz bei geringer Laserintensität  $I_1$  beispielsweise in Resonanz mit dem Zweiphotonenübergang  $3^2S_{1/2} \rightarrow 4^2D_{5/2}$ , so wird eine Erhöhung auf  $I_2 = 5,7 \text{ MW/cm}^2$  bei festgehaltener Laserfrequenz zu einer Resonanz mit dem  $4^2D_{3/2}$ -Zustand führen, eine weitere Erhöhung wird den Übergang ganz aus der Resonanz schieben (siehe Abb. 13).

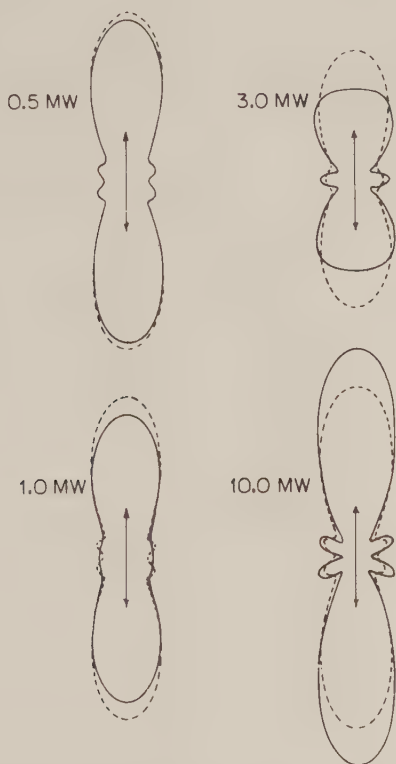


**Abb. 13 :** Verschiebung der Resonanzen durch Verschiebung der atomaren Energiezustände bei wachsender Laserintensität  $I$ . Die Abbildung ist nicht maßstäblich !

#### 6.4. Theoretische Ergebnisse

Die in 6.2 angeführten dynamischen Gleichungen wurden von Dixit und Lambropoulos<sup>38),39)</sup> numerisch integriert. Abb. 14 zeigt die entsprechenden Winkelverteilungen. Die Lichtfrequenz ist die des Zweiphotonenübergangs  $3S_{1/2} \rightarrow 4^2D_{5/2}$ . Für geringe Laserintensitäten zeigt sich die Form von Abb. 10c. Wird die Intensität erhöht, so wird durch die Stark-Verschiebung der  $4^2D_{3/2}$ -Zustand in Resonanz gebracht (siehe Abb. 13), die Winkelverteilung ähnelt der in Abb. 10b.

Wird die Intensität weiter erhöht, sind beide Zustände aus der Resonanz geschoben, ihre Feinstruktur trägt nicht mehr zu den Winkelverteilungen bei und ihre Form nähert sich der in Abb. 10a .



**Abb. 14 :** Theoretische Winkelverteilungen unter dem Einfluß der Laserintensität (in Einheiten von  $\text{MW}/\text{cm}^2$ ) nach Dixit und Lambropoulos<sup>38</sup>. Die Laserfrequenz bleibt auf den  $4^2\text{D}_{5/2}$ -Zustand abgestimmt. Durchgezogene Kurve : monochromatisches Lichtfeld. Gestrichelte Kurve : Laserlinienbreite 60 MHz unter Annahme eines Phasendiffusionsmodells (siehe Kapitel 6.2).

In den Berechnungen von Geltmann und Leuchs<sup>40)</sup> ist die Hyperfeinwechselwirkung des Grundzustandes mit eingeschlossen worden. Für die beiden im Experiment untersuchten Übergänge ergibt sich :

a) Ist die Laserfrequenz auf den Übergang  $3^2S_{1/2}(F=1) \rightarrow 4^2D_{5/2}$  abgestimmt, so ist das Ergebnis ähnlich dem, das oben diskutiert wurde : Eine Intensitätserhöhung führt zu einer Resonanz mit dem  $4^2D_{3/2}$ -Zustand, eine weitere Erhöhung bringt beide 4D-Zustände aus der Resonanz (siehe Abb. 15a).

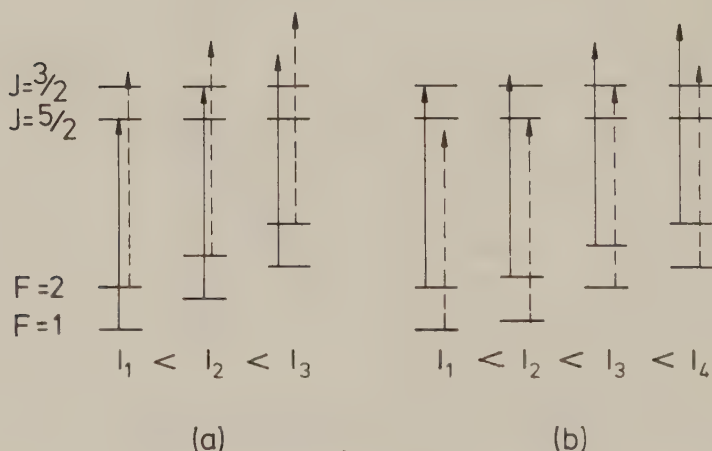


Abb. 15 : Verschiebung der Resonanzen bei wachsender Laserintensität unter Berücksichtigung der Hyperfeinstruktur des Grundzustandes. (a) Abstimmung auf den Übergang  $3^2S_{1/2}(F=1) \rightarrow 4^2D_{5/2}$ . (b) Abstimmung auf den Übergang  $3^2S_{1/2}(F=2) \rightarrow 4^2D_{3/2}$ . Die Abb. ist nicht maßstäblich !

b) Ist die Laserfrequenz auf den Übergang  $3^2S_{1/2}(F=2) \rightarrow 4^2D_{3/2}$  abgestimmt, so führt eine Intensitätserhöhung zunächst zu einer Resonanz  $3^2S_{1/2}(F=1) \rightarrow 4^2D_{5/2}$ , dann wie oben zu einer Resonanz  $3^2S_{1/2}(F=1) \rightarrow 4^2D_{3/2}$  und schließlich aus der Resonanz (siehe Abb. 15b).

Entsprechend verhalten sich die Parameter  $a_{2n}$  aus der Darstellung (6.3), siehe Abb. 16. Winkelverteilungen vom Typ  $3^2S_{1/2} \rightarrow 4^2D_{5/2} \rightarrow$  Kontinuum sind durch größere  $a_{2n}$  gekennzeichnet als solche vom Typ  $3^2S_{1/2} \rightarrow 4^2D_{3/2} \rightarrow$  Kontinuum. Für den Fall a) zeigt Abb. 16a zunächst ein Abfallen der  $a_{2n}$  mit wachsender Intensität, die Winkelverteilung wird charakteristisch für die Photoionisation aus einem  $D_{3/2}$  Zustand; danach steigen die  $a_{2n}$  wieder an. Für den Fall b) steigen die  $a_{2n}$  zunächst an, der  $4^2D_{5/2}$ -Zustand kommt in Resonanz, ein kurzer Abfall daraufhin zeigt, daß wieder ein Übergang nach  $4^2D_{3/2}$  auftritt, ehe die Winkelverteilung die typische Form für hohe Intensitäten annimmt (siehe Abb. 16b). Die gestrichelten Kurven geben den Fall an, daß die Laserfrequenz gegenüber der ungestörten Übergangsfrequenz verstimmt ist. Ein (+) kennzeichnet eine Verstimmung um +100 MHz, ein (-) eine Verstimmung um -100 MHz. Man sieht, daß eine Ungenauigkeit in der Abstimmung des Lasers bei niedrigen Intensitäten zu höheren Diskrepanzen führen kann, ohne daß allerdings die Tendenz der Winkelverteilungen geändert würde.

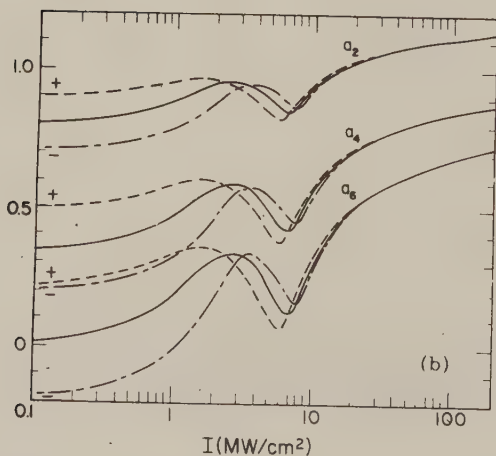
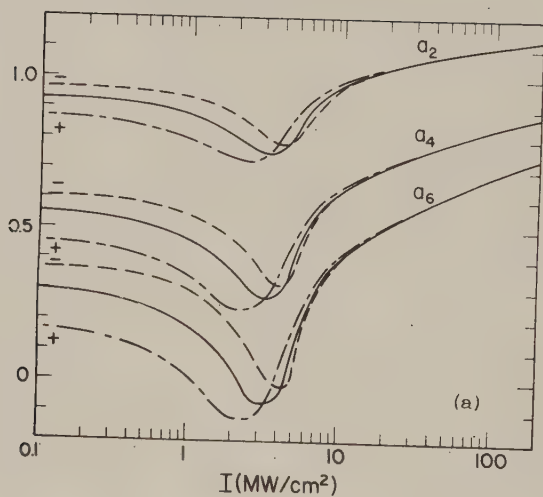


Abb. 16 : Verhalten der Koeffizienten  $a_{2n}$  der Winkelverteilungen bei wachsender Intensität<sup>40)</sup>. (a) Abstimmung auf den Übergang  $3^2S_{1/2}(F=1) \rightarrow 4^2D_{5/2}$ . (b) Abstimmung auf den Übergang  $3^2S_{1/2}(F=2) \rightarrow 4^2D_{3/2}$ .

## 7. Experiment

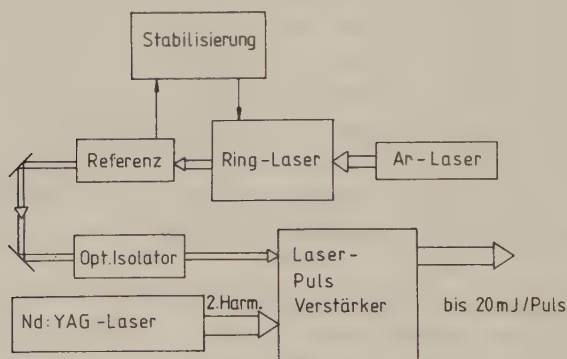
### 7.1. Lasersystem

Die Anforderungen an das Lasersystem für dieses Experiment sind vergleichsweise hoch : Für eine effektive Photoionisation sind Leistungen erforderlich, wie sie nur von gepulsten Lasern geliefert werden. Andererseits müssen die einzelnen Linien des Übergangs (siehe 5.) aufgelöst werden können, der Laser muß also frequenzstabil sein und eine Linienbreite besitzen, die deutlich kleiner ist als der kleinste Linienabstand von  $0.7\text{GHz}/2$  , der im untersuchten Zweiphotonenspektrum vorkommt. Gepulst gepumpte Laseroszillatoren mit Verstärkern können diese Bedingungen kaum gleichzeitig erfüllen.

Deshalb wurde für dieses Experiment der Strahl eines kontinuierlich betriebenen Farbstoff-Ringlasers mit einem gepulst gepumpten Laserverstärker nachverstärkt. Der Farbstoff-Ringlaser (Spectra Modell 380) wurde von einem Argon-Ionen-Laser (Spectra Modell 171) gepumpt und konnte bis über 1000 mW Ausgangsleistung bei einer Wellenlänge  $\lambda = 579\text{ nm}$  im Ein-Moden-Betrieb liefern, seine Frequenz wurde mit Hilfe eines thermisch stabilisierten Resonators festgehalten. Die vom Hersteller angegebene Linienbreite beträgt 1 MHz . Zuweilen auftretende Modensprünge konnten mit Hilfe von Fluoreszenzmessungen (siehe 7.2.) und anhand des Ringmusters eines externen Etalons nachgewiesen werden; Messungen, bei denen ein Modensprung stattgefunden hatte, wurden verworfen.

Das Verstärkersystem wurde mit der frequenzverdoppelten Grundwelle eines Nd:YAG-Lasers (Neodym in Yttrium Aluminium Granat) gepumpt (Quanta Ray Modell DCR-1A). Mit dem ursprünglich aufgebauten System<sup>41)</sup> wurden erste Messungen bei geringen Intensitäten durchgeführt, für höhere Intensitäten wurde es durch ein kommerzielles ersetzt (Quanta Ray Modell PDA), siehe Abb. 17 . Die Ausgangsleistung dieses Pulsverstärkers war unabhängig von der vom Ringlaser gelieferten Eingangsleistung, sobald diese 150 mW überschritt. Um zu verhindern, daß Fluoreszenz aus dem Verstärker zurück in den Ringlaser ge-

rät und diesen stört, war im Strahlengang ein optischer Isolator, bestehend aus einem Faraday-Rotator und einer  $\lambda/2$ -Platte, eingesetzt. Der Farbstoff-Ringlaser wurde mit Rhodamin 6G betrieben, der Farbstoff-Pulsverstärker mit Rhodamin B .



**Abb. 17 :** Schema des Lasersystems zur Erzeugung von Nanosekunden-Pulsen.

Das Lasersystem lieferte Pulse mit Energien bis zu 20 mJ , die Pulsdauer wurde mit einer Hochspannungs-Photodiode (Anstiegszeit  $\approx 0.5$  ns) gemessen und betrug etwa 6 ns (volle Breite bei halber Höhe). Die Pulse des Nd:YAG-Lasers sind allerdings zeitlich nicht glatt, sondern zeigen einzelne scharfe Maxima und Minima, die in Höhe und in zeitlicher Lage von Puls zu Puls schwanken. Sie rühren von der Interferenz mehrerer Moden her, die im Oszillator des Nd:YAG-Lasers anschwingen können. Diese zeitliche Struktur überträgt sich auch teilweise auf die Pulse des Pulsverstärkers. Zur Vermeidung dieser Intensitätsmodulationen ist der Nd:YAG-Laser mit einem "electronic line narrowing" (ELN) ausgerüstet. Diese Einrichtung soll durch elektronisch kontrolliertes Öffnen des Güteschalters im Laserresonator das Anschwingen nur einer einzigen Resonatormode begünstigen. Ein Puls einer einzelnen Mode zeigt einen glatten Intensitätsverlauf. Die Erfahrung zeigte aber, daß das ELN nicht immer richtig anspricht und nur

ein Bruchteil der Laserpulse einen glatten Intensitätsverlauf aufweisen. Da das ELN außerdem starke elektromagnetische Störpulse liefert, wurde auf seine Verwendung verzichtet.

Zur Verbesserung des räumlichen Strahlprofils wurde der Strahl aus dem Pulsverstärker innerhalb eines Teleskops auf eine Blende mit einem Durchmesser von 0,2 mm fokussiert und auf diese Weise räumlich gefiltert. Wegen der hohen Laserpulsintensitäten wurden diese Blenden im Lauf der Messungen beschädigt und mußten ausgewechselt werden. Als vergleichsweise haltbar erwiesen sich Blenden aus Edelstahl- oder Tantaleblech. Die Leistungsreserven des Pulsverstärkers waren so hoch, daß trotz der unvermeidlichen Leistungsverluste an der Blende genügend Laserintensität für den ganzen experimentell zu überdeckenden Bereich zur Verfügung stand. Diese Strahlverbesserung hat den Vorteil, daß der Strahl hinter der Blende als beugungsbegrenzt angenommen werden kann, so daß sein Querschnitt in jedem Punkt der Strahlachse bekannt ist und daraus die Laserintensität bestimmt werden kann.

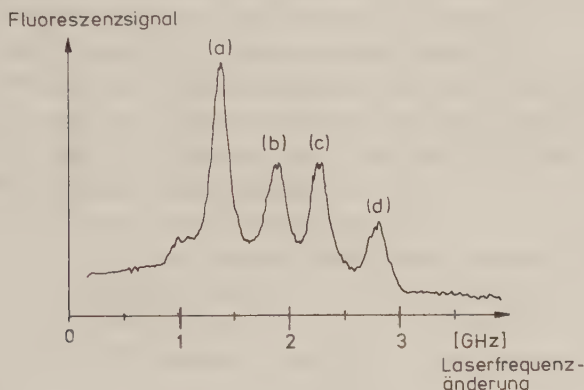
Nach dem Teleskop durchläuft der Strahl ein Polarisationsprisma, das die lineare Polarisation des Laserlichtes sicherstellt. Mit der darauffolgenden achromatischen  $\lambda/2$ -Platte wurde die Laserpolarisation zur Aufnahme der Winkelverteilungen gedreht. Schließlich wurde der Strahl mit einer plankonvexen Linse der Brennweite  $f = 50$  cm auf den Atomstrahl fokussiert. Meistens wurde der Pulsverstärker mit hoher Pumpleistung betrieben, da dann die Intensitätsschwankungen von Puls zu Puls am geringsten waren, für die Messungen wurde die Intensität durch Einsetzen von Neutralglasfiltern entsprechend abgeschwächt. Die mittlere Laserleistung wurde mit einem thermischen Leistungsmesser gemessen. Die Laserintensitäten in der Wechselwirkungsregion lassen sich dann aus der gemessenen Leistung, der Pulslänge, der Repetitionsrate und dem Fokusquerschnitt berechnen. Die im folgenden angegebenen Laserintensitäten sind auf diese Weise bestimmt worden, Unsicherheiten in der Kalibrierung des Leistungsmessers, der Pulslänge und über das Strahlprofil sowie in der Genauigkeit der Neutralglasfilter führen zu einer Unsicherheit von einem Faktor 2 .

Bei sehr geringen Laserintensitäten (  $< 10 \text{ MW/cm}^2$  ) reichte die Intensität des gepulsten Farbstofflasers nicht aus, um eine ausreichende Ionisationsrate zu erzielen. In diesem Fall wurde die Ionisation des 4D-Zustands mit frequenzverdoppeltem Licht des Nd:YAG-Lasers (mit  $\lambda = 532 \text{ nm}$ ) unterstützt. Diese Pulse wurden kollinear und mit paralleler Polarisation zu den Farbstofflaserpulsen eingestrahlt und die Polarisation beider Strahlen mit der achromatischen  $\lambda/2$ -Platte zugleich gedreht. Die Pulse wurden gegenüber den Farbstofflaserpulsen, die den 4D-Zustand anregen, um 14 ns verzögert, damit sie nur zur Photoionisation führen und nicht eine zusätzliche Stark-Verschiebung oder andere Störungen der gebundenen Zustände hervorrufen. Diese Zeitverzögerung durfte nicht zu sehr verlängert werden, da sich sonst die zeitliche Entwicklung von kohärent superponierten Zeemann-Unterkomponenten im Erdmagnetfeld bemerkbar macht, für die eine typische Periode von  $1 \mu\text{s}$  erwartet wird. Dieser Einfluß konnte im Experiment qualitativ beobachtet werden. Eine vollständige Kompensation aller Magnetfelder in der Wechselwirkungsregion war durch Felder von der Ofenheizspule, des Elektromotors der Turbopumpe und einiger magnetisierbarer Metallteile der Apparatur erschwert.

## 7.2. Fluoreszenzmessungen

Um das Auflösungsvermögen des Lasersystems zu überprüfen und um das System auf einen der vier Übergänge abstimmen zu können, wurden nach der Methode der Doppler-freien Zweiphotonenspektroskopie<sup>42)</sup> die Laserpulse in eine Natrium-Dampfzelle gerichtet. Die angeregten 4D-Zustände zerfallen in einer Kaskade in den Grundzustand, die Fluoreszenz des Übergangs  $4P \rightarrow 3S$  (mit  $\lambda \approx 330 \text{ nm}$ ) wurde mit einem Photovervielfacher beobachtet. Abb. 18 zeigt ein auf diese Weise aufgenommenes Fluoreszenzspektrum. Man sieht deutlich, daß alle vier Übergänge sauber aufgelöst werden können; die Laserlinienbreite wird auf ungefähr 130 MHz abgeschätzt. Die Fluoreszenzspektren wurden mit so geringen Intensitäten aufgenommen, daß eine Intensitätsänderung noch keine Verschiebung und Verbreiterung der Linien mit sich brachte. Die Breite der einzelnen Linien erlaubt es nicht, die Frequenz des Lasers genauer als bis auf 100 MHz abzustimmen, mögliche kleinere Frequenz-

verschiebungen des Lasers in diesem Intervall während einer Messung ließen sich so nicht ausschließen.



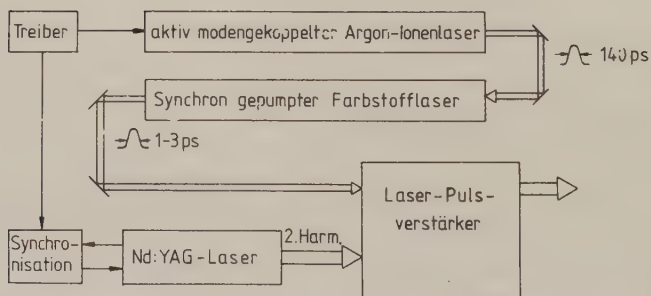
**Abb. 18 :** Fluoreszenzspektrum der Zweiphotonenanregung des 4D-Zustands (Vgl. Abb. 9)

- (a)  $3S(F=2) \rightarrow 4^2D_{5/2}$
- (b)  $3S(F=2) \rightarrow 4^2D_{3/2}$
- (c)  $3S(F=1) \rightarrow 4^2D_{5/2}$
- (d)  $3S(F=1) \rightarrow 4D^2_{3/2}$

### 7.3. Pikosekunden-Lasersystem

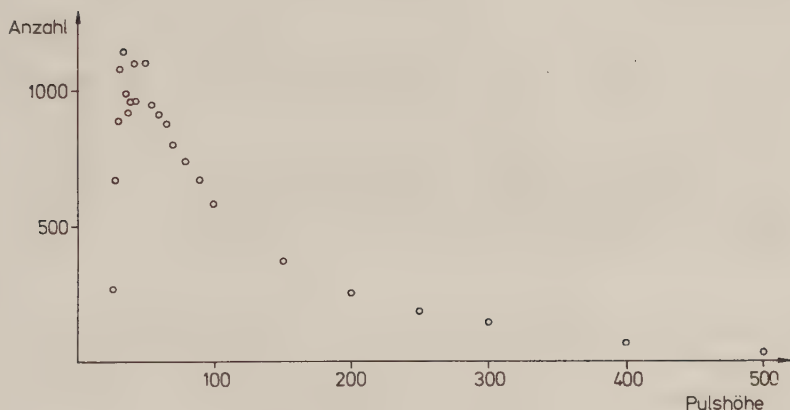
Das System zur Erzeugung von Pikosekunden-Laserpulsen ist in Abb. 19 gezeigt. Im Gegensatz zur Erzeugung von Nanosekunden-Pulsen (siehe Abb. 17) ist hier der Farbstoff-Ringlaser durch einen linearen Farbstofflaser ersetzt, dessen Resonatorlänge exakt auf die des Argon-Ionenlasers abgestimmt werden kann. Der Argon-Ionenlaser wird zur Erzeugung von Pikosekunden-Pulsen mit einem akusto-optischen Modulator mit einer Radiofrequenz von 41 MHz moduliert. Durch diese aktive Modenkopplung werden Lichtpulse mit einer Dauer von ca. 140 ps emittiert. Da die Modulation mit der Intensität des Radiosig-

nals erfolgt, beträgt die Repetitionsrate 82 MHz . Die Pulsdauer wurde mittels einer schnellen Pin-Photodiode und einem Sampling-Oszilloskop aufgenommen. Die mittlere Leistung des Argon-Ionenlasers betrug in dieser Betriebsart 1,5 - 2 W . Mit diesen Pulsen wurde der lineare Farbstofflaser (Farbstoff: Rhodamin 6G) synchron gepumpt und lieferte bei einer mittleren Ausgangsleistung von 80 - 100 mW Pulse von ungefähr 1 ps Dauer. Diese Pulsdauer wurde mit einem Autokorrelator gemessen. Da die Intensität dieser Pulse für eine effektive Ionisation nicht ausreichte, mußten sie ebenfalls mit dem Laser-Pulsverstärker nachverstärkt werden. Der Nd:YAG-Laser, der den Pulsverstärker pumpt, wurde mit einer Repetitionsrate von 10 Hz betrieben. Da die Länge seiner Pulse bei  $\lambda = 532 \text{ nm}$  ca. 7-8 ns betrug, der Pulsfolgeabstand des Pikosekunden- Farbstofflasers aber ca. 12 ns , mußten die Pulse des Nd:YAG-Lasers auf die Pikosekundenpulse synchronisiert werden. Dadurch war sichergestellt, daß der Verstärker genau dann gepumpt wurde, wenn er von einem Pikosekundenpuls durchlaufen wurde.



**Abb. 19 :** Schema des Lasersystems zur Erzeugung und Verstärkung von Pikosekunden-Laserpulsen.

Die mittlere Leistung des Pulsverstärkers betrug typischerweise 3 mW , eine genaue Messung der Pulsdauer war wegen der geringen Repetitionsrate nicht möglich, die Pulsdauer sollte von der gleichen Größenordnung wie die der eingekoppelten Pulse sein. Eine experimentelle Schwierigkeit stellten die von Puls zu Puls wechselnden Intensitätsmodulationen der Pumppulse des Nd:YAG-Lasers dar (siehe 7.1) . Es konnten sowohl Maxima als auch Minima innerhalb des Pumpulses mit dem zu verstärkenden Pikosekundenpuls koinzidieren. Dies führte zu erheblichen Schwankungen in der Ausgangsenergie der einzelnen verstärkten Pulse. Eine Häufigkeitsverteilung über der Pulshöhe (in willkürlichen Einheiten) ist in Abb. 20 gezeigt.



**Abb. 20 :** Pulshöhenverteilung der nachverstärkten Pikosekunden-Laserpulse.

Für die Messung der Winkelverteilung ist dies allerdings nicht gravierend, da man bei diesen Pulslängen keine Auflösung des 4D-Zustands erwartet und daher Intensitätseffekte keinen Einfluß auf die Form der Winkelverteilungen haben sollten. Im Gegensatz dazu wären Messungen der absoluten Ionisationsrate sehr empfindlich gegenüber solchen

Schwankungen. Wegen der großen Linienbreite der Pikosekundenpulse genügte es, den synchron gepumpten Farbstofflaser mittels eines Gittermonochromators auf die gewünschte Wellenlänge abzustimmen.

#### 7.4. Apparatur

Die Natriumatome werden aus einem Ofen bei Temperaturen zwischen  $220^{\circ}\text{C}$  und  $240^{\circ}\text{C}$  in ein Vakuum von ca.  $10^{-6}$  mbar verdampft. Der Atomstrahl wird durch Blenden kollimiert. In der Wechselwirkungsregion beträgt die Dichte  $10^7$  Atome/cm<sup>3</sup>. Die Wechselwirkungsregion ist in Abb. 21 gezeigt, sie ist nahezu vollständig von einem Kupfermantel umgeben, der auf der Temperatur von flüssigem Stickstoff gehalten wird. Die Wechselwirkungsregion wird zur Vermeidung von Streufeldern von zwei Kupferplatten abgeschirmt, die mit einem Abstand von 1,2 cm auf gleichem Potential gehalten werden. Photoelektronen, die senkrecht zu Atom- und Laserstrahl emittiert werden, durchlaufen eine mit Drahtnetz abgeschirmte quadratische Öffnung und treffen dann auf einen Elektronenvervielfacher. Die Fläche der Öffnung von  $1\text{ mm}^2$  bestimmt das Winkelauflösungsvermögen des Detektors. Zur Aufnahme der Winkelverteilungen wird nicht der Detektor sondern die Polarisation des Laserstrahls gedreht.

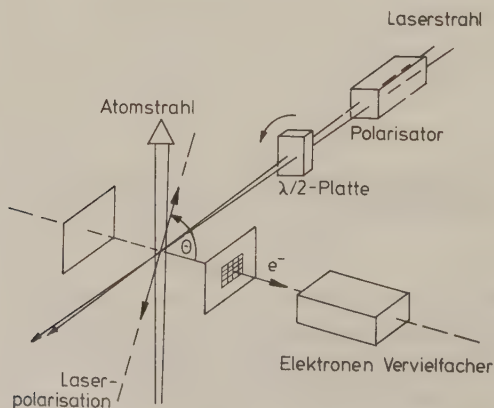
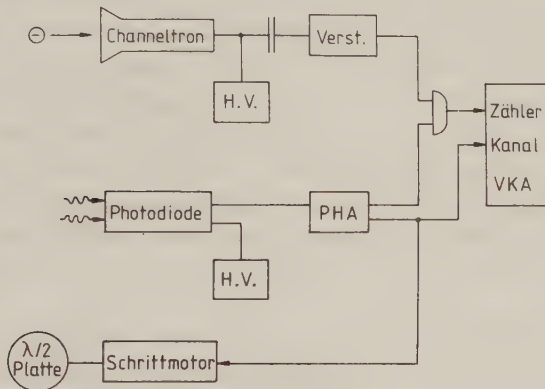


Abb. 21 : Schematische Darstellung der Wechselwirkungsregion

## 7.5. Steuerung und Datenaufnahme

Steuerung und Datenaufnahme sind schematisch in Abb. 22 gezeigt.



**Abb. 22 :** Schema der Datenaufnahme. Nur wenn ein Lichtpuls geeigneter Intensität vom Pulshöhenanalysator (PHA) akzeptiert wurde, kann ein verstärkter Puls des Channeltron vom Vielkanalanalysator (VKA) gezählt werden.

Die Winkelverteilungen sollten für wohlbestimmte Laserintensitäten aufgenommen werden. Aufgrund von Intensitätsschwankungen des Nd:YAGLasers schwankte auch die Intensität des Pulsverstärkers von Puls zu Puls. Deshalb wurde jeder Laserpuls mit einer Photodiode und einem Pulshöhendiskriminator analysiert. Nur wenn seine Höhe innerhalb eines Intervalls von  $\pm 10\%$  um einen vorgewählten Wert lag, wurde das übrige System mit einem Steuerpuls aus dem Diskriminator aktiviert. Die Winkelverteilungen wurden auf einem Vielkanalanalysator aufgenommen. Jedem Kanal entspricht eine bestimmte Stellung der  $\lambda/2$ -Platte und damit ein bestimmter Winkel  $\theta$ . Nach jedem Steuerpuls konnte der Vielkanalanalysator innerhalb eines kurzen Zeitfensters einen Puls vom Detektor empfangen und in den entsprechenden Kanal aufsummieren. Die Dunkelpulsrate des Channeltrons war so gering ( $\approx 1-10$  Pulse/s), daß praktisch keine Dunkelpulse innerhalb des Zeitfensters gezählt wurden.

Nachdem das Zeitfenster wieder geschlossen war, wurde der Vielkanalanalysator um einen Kanal weiter gesetzt und die  $\lambda/2$ -Platte mit einem Schrittmotor um  $0,72^\circ$  weiter gedreht. So entstand ein Histogramm, das die Zählrate für die Photoelektronen in Abhängigkeit des Winkels zwischen Laserpolarisation und Detektor angibt. Die  $\lambda/2$ -Platte wurde immer im gleichen Umlaufsinn fortschreitend gedreht, während der Vielkanalanalysator nach 125 Kanälen zurückgesetzt wurde, was einem Winkelbereich der Daten von  $0^\circ$  bis  $180^\circ$  entspricht. (Eine Drehung der  $\lambda/2$ -Platte um  $90^\circ$  führt zu einer Polarisationsdrehung von  $180^\circ$ ). Auf diese Weise können eventuelle Asymmetrien ausgemittelt werden, die von der  $\lambda/2$ -Platte hervorgerufen werden. Als Vielkanalanalysator diente ein Kleincomputer (Commodore CBM 8032) mit dem die Daten leicht gespeichert und zur Auswertung auf einen PDP11 Computer übertragen werden konnten.

Da das System nicht unterscheiden kann, ob ein oder mehrere Elektronen gleichzeitig den Detektor trafen, wurde die Zählrate so gehalten, daß sie im Maximum der Winkelverteilung höchstens 25% - 30% betrug, um den statistischen Fehler (siehe 7.6) gering zu halten und trotzdem in moderater Zeit eine Winkelverteilung aufnehmen zu können.

## 7.6. Datenverarbeitung und Auswertung

Nach der Übertragung auf den PDP11 Computer wurden die Daten zunächst noch einer Korrektur unterzogen. Damit soll der Fehler korrigiert werden, der entsteht, wenn das System mehrere gleichzeitig eintreffende Elektronen nur durch einen Puls anzeigt :

$$P_{kor}(\theta) = \ln \frac{1}{1 - P_{exp}(\theta)}$$

wobei  $P_{exp}(\theta)$  die vom System aufgenommene Zählrate ist, während  $P_{kor}(\theta)$  die erwartete tatsächliche Zählrate ist. Hierbei liegt die experimentell verifizierte Annahme zugrunde, daß die Zahl der Photoelektronen pro Laserpuls, die den Detektor treffen, einer Poisson-Statistik gehorcht.

Die so korrigierten Daten wurden in 25 neuen Kanälen zusammengefaßt, so daß für die Anpassung der Parameter  $a_{2n}$  insgesamt 25 Stützstellen der Variablen  $\theta$  zwischen  $0^\circ$  und  $180^\circ$  zur Verfügung standen. Das anschließende Anpassungsprogramm paßte die Parameter  $a_{2n}$  nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate an. Außerdem konnte in diesem Programm der Nullpunkt für die Variable  $\theta$  angepaßt werden für den Fall, daß im Experiment beim Start (Kanaln. 1) die Laserpolarisation nicht parallel zur Detektionsrichtung stand. Anschließend wurden die Datenpunkte und die angepaßte Kurve symmetrisch auf den Bereich von  $180^\circ$  bis  $360^\circ$  ergänzt.

Der absolute Fehler in den gewonnenen Koeffizienten  $a_{2n}$  läßt sich direkt berechnen. Da die Koeffizienten  $a_{2n}$  unabhängige Parameter in der Anpassung sind, gilt für die Standardabweichung  $\sigma_{abs}(a_{2n})$  :

$$\sigma_{abs}^2(a_{2n}) = \frac{2}{\partial^2 \chi^2 / \partial a_{2n}^2} \quad (7.1)$$

$$\text{mit } \chi^2 = \sum_i \frac{1}{\sigma_i^2} [P_{kor}(\theta_i) - P(\theta_i)]^2$$

wobei  $P(\theta_i)$  die angepaßte Winkelverteilung in der Form (6.3) mit den angepaßten Koeffizienten  $a_{2n}$  ist.  $\sigma_i$  ist hier die Schwankung der korrigierten Zählrate  $P_{kor}(\theta)$ . Da diese statistischen Fluktuationen unterliegt, die einer Poisson-Statistik gehorchen, gilt :  $\sigma_i^2 \approx P_{kor}(\theta_i)$ . Alle in dieser Arbeit angegebenen Fehler sind die nach Formel (7.1) berechneten Standardabweichungen. Sie bedeuten also, daß die experimentell bestimmten Koeffizienten  $a_{2n}$  mit einer Wahrscheinlichkeit von 68% innerhalb dieser Fehlergrenzen liegen.

## 7.7. Ergebnisse

### a) Winkelverteilungen bei geringen Intensitäten

Die Aufnahme von Winkelverteilungen mit Nanosekundenpulsen war nach der Aufnahme der Fluoreszenzspektren (siehe 7.2.) der entscheidende Prüfstein dafür, daß das Lasersystem den für das Experiment notwendigen Anforderungen an die Linienbreite und die Frequenzstabi-

lität gerecht wird. Wie schon in 7.1. erwähnt, muß die Photoionisation mit verzögerten Lichtpulslen der Wellenlänge  $\lambda = 532 \text{ nm}$  des Nd:YAG-Lasers unterstützt werden. In Abb. 23 sind die gemessenen Winkelverteilungen in einem Polardiagramm dargestellt. In allen Polardiagrammen dieser Arbeit ist die Polarisationsrichtung des Lasers stets senkrecht.

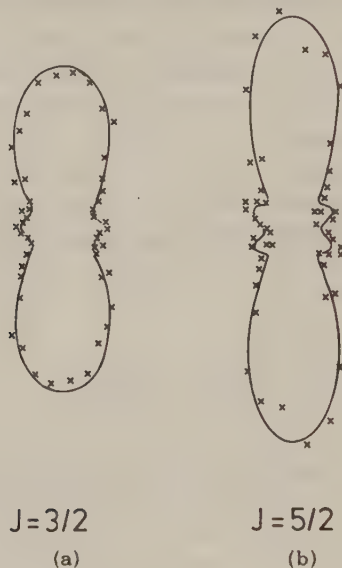


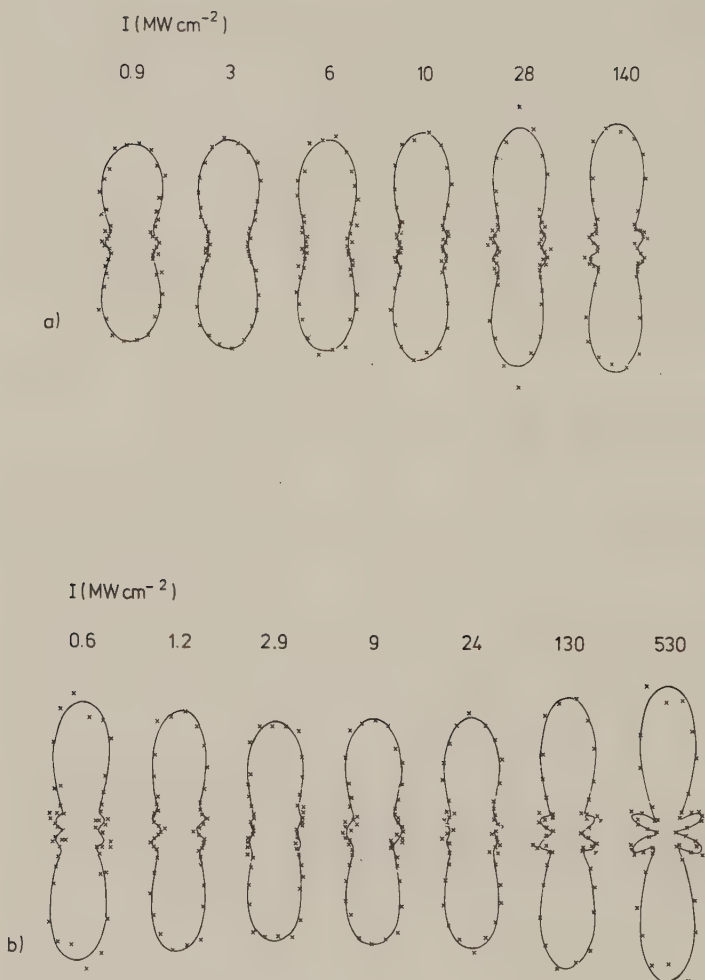
Abb. 23 : Experimentelle Winkelverteilungen bei niedrigen Intensitäten. Abstimmung (a) auf den  $4^2D_{3/2}$ -Zustand, (b) auf den  $4^2D_{5/2}$ -Zustand. Die durchgezogenen Kurven sind die theoretischen aus Abb. 10 und wurden nur im Maßstab angepaßt.

Die in Abb. 23 gezeigten Winkelverteilungen stammen aus den Übergängen  $3^2S_{1/2}(F=1) \rightarrow 4^2D_{3/2} \rightarrow \text{Kontinuum}$  (a) und  $3^2S_{1/2}(F=2) \rightarrow 4^2D_{5/2} \rightarrow \text{Kontinuum}$  (b). Zur Darstellung dieser Winkelverteilungen mußten mehrere Messungen bei gleicher Intensität aufgenommen werden. Nach jeder dieser Messungen wurde die Laserfrequenz überprüft (siehe 7.2.) und gegebenenfalls neu eingestellt. Alle Messungen, bei denen keine Frequenzveränderung geschah (z.B. durch Modensprünge des Ringlasers), wurden für die Auswertung verwendet. Das Verfahren ist in 7.5. beschrieben worden. Die Daten wurden schließlich aufsummiert und un-

ter Annahme der Symmetrie in den Bereich von  $180^\circ$  bis  $360^\circ$  ergänzt. Die einzelnen Kreuze stellen die so entstandenen Meßpunkte dar und beschreiben die Ionisationsrate unter dem entsprechenden Winkelbereich. Die durchgezogenen Kurven sind keine angepaßten Kurven, sondern sind die theoretischen Kurven, die nur die Detektorauflösung, enthalten. Ihre Koeffizienten  $a_{2n}$  sind in 6.1. (Tabelle 1) angegeben worden. Lediglich der willkürliche Abbildungsmaßstab wurde angepaßt. Ein quantitativer Vergleich mit den experimentellen Koeffizienten wird in 8.1 vorgenommen. Die Zahl der verwerteten Laserpulse sowie die absoluten Fehler der Meßergebnisse sind Tabelle 2 zu entnehmen (siehe folgenden Abschnitt b) ).

## b) Winkelverteilungen in Abhängigkeit von der Intensität

Abb. 24 zeigt Winkelverteilungen, die bei verschiedenen Laserintensitäten aufgenommen wurden (Die Zahlen geben die Laserintensitäten in  $\text{MW}/\text{cm}^2$  an). Auch hier wurden wie in a) zu jeder Intensität mehrere Messungen gemacht und aufsummiert. Die durchgezogenen Kurven sind hier die nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate angepaßten Funktionen  $P(\theta)$  . Bei der Anpassung wurden als Parameter die Koeffizienten  $a_{2n}$  sowie der Nullpunkt für den Winkel  $\theta$  benutzt. Die Winkelverteilungen bei den jeweils geringsten Intensitäten sind dieselben wie in Abb. 23 . Die angepaßten Kurven unterscheiden sich nur sehr geringfügig von den in Abb. 23 gezeigten theoretischen Kurven. Auch hier mußte für alle Messungen bei Intensitäten unter  $10\text{MW}/\text{cm}^2$  die Photoionisation mit dem verzögerten Lichtpuls des Nd:YAG-Lasers ( $\lambda = 532 \text{ nm}$ ) unterstützt werden. In Tabelle 2 sind die Parameter  $a_{2n}$  der Winkelverteilungen aus Abb. 24 in Abhängigkeit von der Intensität der Farbstofflaserpulse aufgeführt, die Zahlen in Klammern geben den absoluten Fehler in den letzten beiden Stellen an. Ferner ist die Anzahl von Laserpulsen der angegebenen Intensität aufgeführt, mit denen jeder der Datenpunkte ermittelt wurde, außerdem ist vermerkt, ob die Ionisation mit dem Nd:YAG-Laser unterstützt wurde.



**Abb. 24 :** Experimentell ermittelte Abhängigkeit der Winkelverteilungen von der Laserintensität. (a) Abstimmung auf den Übergang  $3S(F=2) \rightarrow 4^2D_{3/2}$ . (b) Abstimmung auf den Übergang  $3S(F=1) \rightarrow 4^2D_{5/2}$ . Die durchgezogenen Kurven sind an die Datenpunkte angepaßt.

Tabelle 2 : Experimentell bestimmte Koeffizienten  $a_{2n}$  in Abhängigkeit von der Laserintensität. Angegeben ist außerdem die Anzahl der Steuerpulse pro Datenpunkt und die Unterstützung der Ionisation durch frequenzverdoppeltes Licht des Nd:YAG-Lasers. Die Zahlen in Klammern geben den absoluten Fehler in den letzten beiden Stellen an.

| $3^2S_{1/2}(F=2) \rightarrow 4^2D_{3/2} \rightarrow \varepsilon f$ |                  |        |           |           |           |
|--------------------------------------------------------------------|------------------|--------|-----------|-----------|-----------|
| Inten-<br>sität<br>(MW/cm <sup>2</sup> )                           | Steuer-<br>pulse | Nd:YAG | $a_2/a_0$ | $a_4/a_0$ | $a_6/a_0$ |
| 0,9                                                                | 2000             | ja     | 0,731(17) | 0,267(17) | 0,001(17) |
| 3                                                                  | 1000             | ja     | 0,811(13) | 0,259(13) | 0,039(13) |
| 6                                                                  | 500              | ja     | 0,780(17) | 0,285(17) | 0,080(17) |
| 10                                                                 | 1500             | nein   | 0,791(16) | 0,376(16) | 0,144(16) |
| 28                                                                 | 500              | nein   | 0,780(25) | 0,432(25) | 0,207(25) |
| 140                                                                | 1900             | nein   | 0,821(17) | 0,458(18) | 0,243(18) |

| $3^2S_{1/2}(F=1) \rightarrow 4^2D_{5/2} \rightarrow \varepsilon f$ |                  |        |           |           |           |
|--------------------------------------------------------------------|------------------|--------|-----------|-----------|-----------|
| Inten-<br>sität<br>(MW/cm <sup>2</sup> )                           | Steuer-<br>pulse | Nd:YAG | $a_2/a_0$ | $a_4/a_0$ | $a_6/a_0$ |
| 0,6                                                                | 1500             | ja     | 0,893(30) | 0,490(29) | 0,230(29) |
| 1,2                                                                | 800              | ja     | 0,833(15) | 0,387(14) | 0,212(14) |
| 2,9                                                                | 1600             | ja     | 0,762(16) | 0,333(16) | 0,129(16) |
| 9                                                                  | 800              | ja     | 0,772(18) | 0,418(18) | 0,086(18) |
| 24                                                                 | 1600             | nein   | 0,795(16) | 0,399(16) | 0,150(16) |
| 130                                                                | 1600             | nein   | 0,894(16) | 0,510(16) | 0,326(15) |
| 530                                                                | 1500             | nein   | 0,854(27) | 0,568(26) | 0,508(26) |

- c) Winkelverteilungen, die mit Pikosekunden-Laserpulsen aufgenommen wurden.

In Abb. 25 ist eine Winkelverteilung dargestellt, wie sie aus der Photoionisation mit den verstärkten Pikosekundenpulsen entsteht. Wegen der großen Intensitätsschwankungen wurden alle Laserpulse verarbeitet, deren Intensität innerhalb eines Intervalls von  $\pm 50\%$  um einen vorgewählten Wert lag. Die Intensität läßt sich nicht sicher aus der Pulsenergie angeben, da die genaue Länge der verstärkten Pulse nicht gemessen werden konnte (siehe 7.3.). Die Tabelle 3 gibt die angepaßten Parameter  $a_{2n}$  und deren absolute Fehler wieder.



**Abb. 25 :** Experimentelle Winkelverteilung aus der Dreiphotonenionisation mit Pikosekunden-Laserpulsen.

**Tabelle 3 :** Experimentell bestimmte Koeffizienten  $a_{2n}$  der Winkelverteilung aus der Photoionisation mit Pikosekunden-Laserpulsen. Die Zahlen in Klammern geben den absoluten Fehler in den letzten beiden Stellen an.

| $a_2/a_0$ | $a_4/a_0$ | $a_6/a_0$ |
|-----------|-----------|-----------|
| 0,858(15) | 0,592(15) | 0,574(15) |

## 8. Diskussion

### 8.1. Winkelverteilungen bei niedrigen Intensitäten

Zunächst sollen die Winkelverteilungen bei niedrigen Intensitäten mit den einfachen Rechnungen aus Kapitel 6 verglichen werden, die noch keine Intensitätseffekte beinhalten. Dies soll zeigen, ob die gesamte experimentelle Anordnung überhaupt Ergebnisse liefern kann, die einen Vergleich mit der Theorie sinnvoll erscheinen lassen. Für den Bereich höherer Intensitäten ist die Theorie aufwendiger und weist größere Unsicherheiten auf. Es ist daher wichtig zu wissen, wie verlässlich die experimentellen Ergebnisse sind. Der Vergleich bei niedrigen Intensitäten ist also ein wichtiger Prüfstein für das Lasersystem, das Nachweis-system und die Datenauswertung.

Die in Abb. 23 gezeigten Winkelverteilungen sind die gleichen wie die bei jeweils niedrigsten Intensitäten in Abb. 24. Jedoch ist die theoretische Kurve in Abb. 23 nicht an die Daten angepaßt, sondern berücksichtigt nur die erwartete Detektorauflösung. In Abb. 24 sind die Kurven hingegen an die Daten angepaßt. Der Vergleich zeigt, daß sich die Kurven kaum unterscheiden. In Tabelle 4 sind die Koeffizienten  $a_{2n}$  der theoretischen Verteilung den bestangepaßten aus den Messungen gegenübergestellt. In Klammern ist wieder der absolute Fehler (siehe 7.6) angegeben.

Für die Winkelverteilung aus dem  $4^2D_{3/2}$ -Zustand betragen die Unterschiede zwischen den theoretischen und den experimentell bestimmten Koeffizienten  $a_{2n}$  ungefähr 1 bis 1,5 Standardabweichungen. Dies liegt im Rahmen der zu erwartenden Genauigkeit. Für die Winkelverteilung aus dem  $4^2D_{3/2}$ -Zustand sind die Standardabweichungen kleiner, die Unterschiede zu den theoretischen Koeffizienten sind daran gemessen größer und betragen 2 bis 3 Standardabweichungen.

Tabelle 4 : Vergleich der theoretischen Koeffizienten  $a_{2n}$  aus Tabelle 1 mit den experimentell ermittelten Koeffizienten für Winkelverteilungen bei niedrigen Intensitäten . (In Klammern sind die absoluten Fehler in den letzten beiden Stellen angegeben.)

|           | $3^2S_{1/2} \rightarrow 4^2D_{3/2} \rightarrow \epsilon f$ |               | $3^2S_{1/2} \rightarrow 4^2D_{5/2} \rightarrow \epsilon f$ |               |
|-----------|------------------------------------------------------------|---------------|------------------------------------------------------------|---------------|
|           | theor.                                                     | experimentell | theor.                                                     | experimentell |
| $a_2/a_0$ | 0,783                                                      | 0,731 (17)    | 0,915                                                      | 0,893 (30)    |
| $a_4/a_0$ | 0,309                                                      | 0,267 (17)    | 0,528                                                      | 0,490 (30)    |
| $a_6/a_0$ | 0,000                                                      | 0,001 (17)    | 0,278                                                      | 0,230 (30)    |

Es fällt in Tabelle 4 auf, daß die experimentellen Werte immer niedriger als die theoretisch erwarteten sind. Zunächst stellt sich die Frage, ob diese systematischen Abweichungen durch die zusätzliche Ionisation mit der zweiten Harmonischen des Nd:YAG-Lasers bei  $\lambda = 532\text{nm}$  erklärt werden kann. Nach Geltman und Leuchs<sup>40)</sup> ist die dadurch hervorgerufene Änderung der Radialmatrixelemente und der Phasendifferenz der beiden Übergänge ins Kontinuum vernachlässigbar gering. Die Winkelverteilungen bei geringen Intensitäten bei dem hier untersuchten Übergang werden ja auch im wesentlichen nur von dem einen Übergang in den  $\epsilon f$ -Kontinuumszustand bestimmt, so daß die Radialmatrixelemente und die relativen Phasen keine Rolle spielen. Hingegen zeigt Abb. 16, daß die Koeffizienten  $a_{2n}$  sich erheblich ändern können (bis zu  $\pm 0,2$ ), wenn der Laser um  $\pm 100$  MHz von der genauen Resonanz verstimmt ist. Die Diskrepanzen zwischen Messungen und Theorie sind erheblich kleiner, so daß sie zumindest teilweise der Unsicherheit in der Frequenzabstimmung des Lasers zugeschrieben werden können. Nach Abb. 16 sind für beide Übergänge die Koeffizienten  $a_{2n}$  höherer Ordnung empfindlicher gegenüber einer Frequenzverstimmung. Würde ein systematischer Fehler in der Frequenzabstimmung vorliegen, so sollten auch die Koeffizienten in Tabelle 4 für höheres  $n$  stärker von den theoretischen Koeffizienten abweichen. Dies ist aber nur für die Winkelverteilung aus dem  $4^2D_{5/2}$ -Zustand der Fall. Jede der gezeigten Winkelverteilungen ist durch Aufsummieren von mehreren Messungen entstanden, wobei zwei

schen den einzelnen Messungen die Laserfrequenz zum Teil neu auf den gewünschten Übergang abgestimmt werden mußte (siehe Kapitel 7). Die gezeigten Winkelverteilungen können sich also aus verschiedenen Winkelverteilungen zusammensetzen, die bei verschiedenen Laserfrequenzen in einem Intervall von 100 MHz aufgenommen wurden. Ein systematischer Fehler in der Frequenzabstimmung scheint hingegen nicht wahrscheinlich.

In beiden Winkelverteilungen sind alle Parameter  $a_{2n}$  etwas kleiner als die theoretisch erwarteten, die Winkelverteilungen sind also ein wenig isotroper. Dies kann auch dem Auflösungsvermögen des Detektors zugeschrieben werden. Das in den theoretischen Koeffizienten berücksichtigte Auflösungsvermögen hängt vom tatsächlichen Abstand der Wechselwirkungsregion von der Detektorblende ab. Da dieser Abstand nicht genau vermessen werden konnte, können die Diskrepanzen in Tabelle 4 auch der Unsicherheit im Auflösungsvermögen des Detektors zugeschrieben werden.

Gemessen an dem Ziel des Experimentes, nämlich anhand der Form der Winkelverteilungen eine Zustandsverschiebung durch die Laserintensität nachzuweisen, sind aber die eben behandelten Diskrepanzen von untergeordneter Bedeutung. Die Formen der Winkelverteilungen in Abb. 23 sind so ausgeprägt, daß sie eindeutig den jeweils beteiligten Zwischenzuständen zugeschrieben werden können.

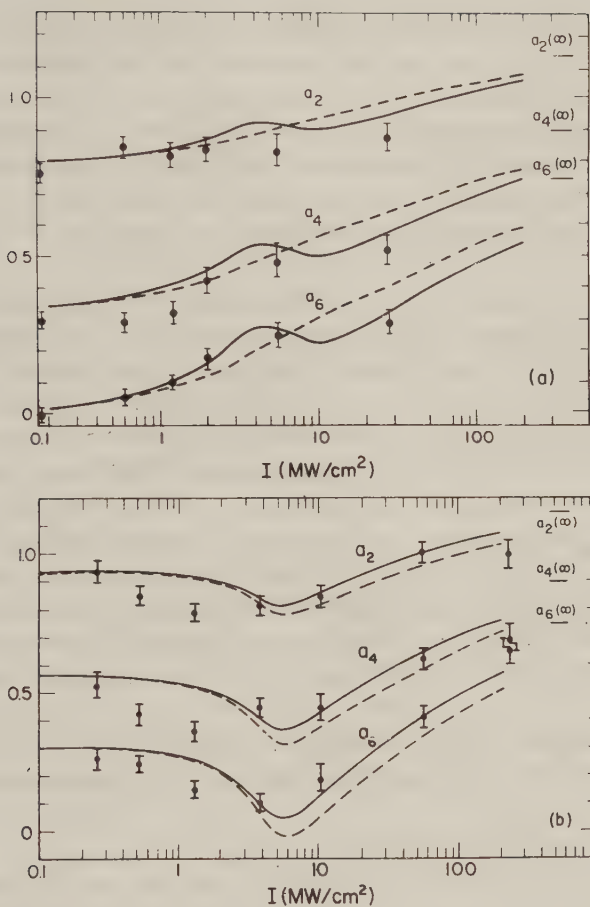
## 8.2. Intensitätsabhängige Winkelverteilungen

Zur Intensitätsabhängigkeit der Winkelverteilungen sind von zwei Autorengruppen Rechnungen durchgeführt worden, die bereits kurz in Kapitel 6.4 vorgestellt wurden. Diese theoretischen Ergebnisse sollen im folgenden mit den experimentellen verglichen werden.

Abb. 14 zeigt die Ergebnisse von Dixit und Lambropoulos<sup>38)39)</sup>, die mit den in 6.2 dargelegten dynamischen Gleichungen gewonnen wurden. Für die Rechnungen wurde ein Laserpuls angenommen, dessen Intensität räumlich völlig homogen ist und einen nahezu rechteckigen Zeitver-

lauf hat (Dauer: 5 ns , Anstiegszeit: 0,1 ns). Die Hyperfeinstruktur des Grundzustands wurde nicht berücksichtigt. Die durchgezogene Kurve in Abb. 14 gilt für ein monochromatisches Lichtfeld, die gestrichelte gilt für eine Laserlinienbreite von 60 MHz im Phasendiffusionsmodell (siehe 6.2). Vergleicht man diese Diagramme mit den experimentellen in Abb. 24b , so sieht man sofort, daß experimentelle und theoretische Ergebnisse in der charakteristischen Änderung der Winkelverteilungen bei Änderung der Intensität übereinstimmen. Unterschiede gibt es jedoch in der Intensitätsskala. Während in den theoretischen Diagrammen der  $4^2D_{3/2}$ -Zustand bei ca.  $3\text{ MW/cm}^2$  durch den dynamischen Stark-Effekt in Resonanz geschoben wird, so geschieht dies im Experiment bei  $9\text{ MW/cm}^2$  . Die möglichen Ursachen dieser Diskrepanzen werden weiter unten diskutiert.

Die Ergebnisse von Geltman und Leuchs<sup>40)</sup> sind in Abb. 16 dargestellt und wurden schon in Kapitel 6.4 erläutert. Auch diese Kurven wurden für einen räumlich und zeitlich homogenen Rechteckpuls berechnet. Sie zeigen zusätzlich die Wirkung, die eine Verstimmung der Laserfrequenz auf die Koeffizienten  $a_{2n}$  hat. Auch hier zeigt sich, daß bei einer Abstimmung der Laserfrequenz auf den ungestörten  $4^2D_{5/2}$ -Zustand (Abb. 16b) der  $4^2D_{3/2}$ -Zustand theoretisch bei einer Intensität von 2 - 3  $\text{MW/cm}^2$  durch den dynamischen Stark-Effekt in Resonanz geschoben werden sollte. Die Koeffizienten  $a_{2n}$  nehmen an dieser Stelle ein Minimum an. Um einen besseren Vergleich mit dem Experiment zu erreichen, haben Geltman und Leuchs in einer weiteren Berechnung dem experimentellen Laserpuls stärker Rechnung getragen, indem sie ein Gauß-Profil der räumlichen und zeitlichen Intensitätsverteilung angenommen haben. Die Ergebnisse, denen eine Laserpulsbreite von 5 ns zugrunde liegt, sind in Abb. 26 gezeigt. In den Diagrammen ist die durchgezogene Kurve die theoretische unter Einschluß der Hyperfeinstruktur des Grundzustands, die gestrichelte Kurve zeigt im Vergleich dazu den Verlauf ohne Berücksichtigung der Hyperfeinstruktur. Außerdem sind die Koeffizienten aus dem Experiment mit ihren Fehlerbalken eingetragen. Die theoretischen Kurven wurden im Bereich hoher Intensitäten an die experimentellen Punkte angepaßt, da in diesem Bereich Unsicherheiten in der Frequenzabstimmung keine Rolle spielen. Um diese Anpassung zu erreichen, mußte die experimentelle Intensitätsskala



**Abb. 26 :** Vergleich der experimentellen Koeffizienten  $a_{2n}$  mit der Theorie<sup>40)</sup>. Die Intensitätsskalen wurden angepaßt.  
 (a) Übergang  $3S(F=2) \rightarrow 4D_{3/2}$ .  
 (b) Übergang  $3S(F=1) \rightarrow 4D_{5/2}$ .

für die Abb. 26a um einen Faktor 5 und für die Abb. 26b um einen Faktor 2 verringert werden. Dies zeigt wieder, daß Schwierigkeiten im Vergleich zwischen den experimentellen und den theoretischen Intensitätsskalen bestehen. Abb. 26a zeigt aber auch, daß der Einschluß der Hyperfeinstruktur des Grundzustands charakteristische Maxima und Minima im Verlauf der Koeffizienten  $a_{2n}$  liefert, die ohne ihn fehlen. Die Datenpunkte folgen diesem Verlauf, so daß dieser Einschluß offenbar zu einer etwas besseren Übereinstimmung der Daten mit der Theorie führt.

Der Vergleich der experimentellen Daten mit den Berechnungen beider Autorengruppen zeigt, daß die Diskrepanzen im wesentlichen zwischen den Intensitätsskalen im Experiment und denen in der Theorie bestehen. Die Ursachen hierfür sind darin zu suchen, daß in den Berechnungen einige experimentelle Parameter nicht hinreichend berücksichtigt wurden, und daß auf der anderen Seite einige Parameter experimentell nicht genau bestimmt werden konnten. Auf der theoretischen Seite konnte vor allem der tatsächliche zeitliche Verlauf der Laserpulse nicht genügend berücksichtigt werden, außerdem wurde für die Linienbreite des Lasers das Phasendifusionsmodell zugrunde gelegt, das die starken Intensitätsschwankungen im Laserpuls nicht hinreichend beschreibt. Auf der experimentellen Seite bestehen Unsicherheiten :

- a) in der Bestimmung der absoluten Intensität,
- b) in der Frequenzabstimmung und in der Frequenzstabilität des Lasersystems.
- c) in der Linienbreite des Laserlichts,
- d) in der räumlichen und zeitlichen Verteilung der Laserintensität.

Die möglichen Auswirkungen dieser experimentellen Unsicherheiten sollen im folgenden diskutiert werden :

- a) Die experimentell ermittelte Intensität kann nicht genauer als bis auf einen Faktor Zwei angegeben werden. Ferner beziehen sich die Angaben auf die Intensität im Fokus des Laserstrahls. Die Brennweite der fokussierenden Linse wurde zwar bei der verwendeten Wellenlänge  $\lambda = 579 \text{ nm}$  experimentell ermittelt, der Abstand von der Linse zum Atomstrahl im Vakuum ließ sich jedoch nicht ganz genau messen, so daß

sich die Wechselwirkungsregion etwas außerhalb des Fokus befinden haben kann. Deshalb müssen die angegebenen Intensitäten eher als Maximalwerte angesehen werden.

b) Aus Abb. 16 geht hervor, daß bei einer Verstimmung der Laserfrequenz die typischen Änderungen der Winkelverteilungen bei anderen Intensitäten auftreten können. Man sieht, daß eine Verstimmung von  $\pm 100$  MHz von der exakten Resonanz zu einer Verschiebung der Intensitätsskala um mehr als  $2 \text{ MW/cm}^2$  führt. Gerade die Koeffizienten  $a_4$  und  $a_6$ , die die Winkelverteilungen am stärksten charakterisieren, ändern sich am meisten bei einer Verstimmung der Laserfrequenz. Die Diskrepanzen der Intensitätsskalen könnten daher teilweise der Tatsache zugeschrieben werden, daß im Experiment die Laserfrequenz nicht genauer als bis auf 100 MHz abgestimmt werden konnte, und daß eine mögliche Drift der Laserfrequenz in diesem Frequenzintervall nicht nachweisbar war.

c) Bereits Abb. 14 zeigt, daß die Berücksichtigung einer Laserlinienbreite von 60 MHz zu einer Modifikation der theoretischen Winkelverteilungen führt. Für das Experiment wurde eine Linienbreite von ca. 130 MHz abgeschätzt. Die Stark-Verschiebungen aus Kapitel 3, die in die Berechnungen eingegangen sind, sind nur für ein monochromatisches Lichtfeld ausgerechnet. Andere spektrale Verteilungen der Intensität könnten daher auch zu anderen dynamischen Stark-Verschiebungen führen.

Bei Mehrphotonenprozessen spielt aber nicht nur die spektrale Intensitätsverteilung, sondern auch die zeitliche Intensitätsverteilung eine Rolle (siehe Kapitel 2.3). Die Linienbreite allein sagt aber noch nichts darüber aus. Wichtig ist daher der folgende Punkt.

d) Die den Daten zugeordneten Intensitäten stellen lediglich ein räumliches und zeitliches Mittel über die tatsächliche Intensitätsverteilung im Laserpuls dar. Während es möglich ist, der räumlichen Intensitätsverteilung in einem beugungsbegrenzten Strahl Rechnung zu tragen, ist es kaum möglich, die genaue zeitliche Form der Laserpulse in diesem Experiment zu berücksichtigen. Wie in Kapitel 7 geschildert, führen Inter-

ferenzen mehrerer anschwingender Moden im Nd:YAG-Laser zu starken Intensitätsmodulationen innerhalb des Laserpulses, die sich teilweise auf den nachverstärkten Strahl übertragen. Der tatsächliche Intensitätsverlauf unterscheidet sich also stark von dem eines Phasendiffusionsmodells, bei dem lediglich die Phase des Lichtfeldes einer statistischen Modulation unterworfen ist, während die Amplitude innerhalb eines kleinen Unschärfebereichs konstant bleibt.

Die starken Intensitätsschwankungen innerhalb des Laserpulses können auch bedeuten, daß die tatsächlichen Kohärenzzeiten nur von der typischen Dauer einer einzelnen Intensitätsspitze innerhalb des Laserpulses sind ( $\leq 1$  ns). In den Berechnungen ist aber angenommen, daß die Kopplungen zwischen den Zuständen über die gesamte Pulsdauer kohärent sind.

Die größten Unterschiede zwischen experimentellen und theoretischen Parametern treten in Punkt d) auf. Es ist daher wahrscheinlich, daß die Diskrepanzen in den Intensitätsskalen zu großen Teilen auf die rechnerisch schlecht beherrschbare Pulsform des Lasersystems zurückzuführen sind.

Diskrepanzen zwischen experimentellen und theoretischen Intensitätsskalen sind aus der Literatur bekannt: So haben Agostini et al.<sup>26)</sup> denselben Ionisationsprozeß in Natrium  $3S \rightarrow 4D \rightarrow$  Kontinuum auf Sättigungseffekte in der totalen Ionisationsrate untersucht. Bei diesem Experiment konnte allerdings die Feinstruktur des  $4D$ -Zustandes nicht aufgelöst werden. Die experimentell sorgfältig bestimmte Intensität und die, die man aufgrund der Stark-Verschiebung erwarten sollte, unterschieden sich um einen Faktor 4. In der Behandlung dieses Experimentes wurde unter Annahme eines chaotischen Lichtfeldes die Linienbreite der Farbstofflaserpulse ebenfalls berücksichtigt.

Die angeführten Punkte zeigen, daß die Festlegung einer absoluten Intensitätsskala sehr schwierig ist, da genaue Details des räumlichen und noch mehr des zeitlichen Verlaufs des Laserpulses für die Berechnungen bekannt sein müssen. Die Diskussion soll aber nicht darüber

hinwegtäuschen, daß es im Experiment gelungen ist, anhand der Winkelverteilungen erstmals eindeutig die Verschiebung resonanter Zwischenzustände durch den dynamischen Stark-Effekt in der Mehrphoto-nionisation vorzuführen. Die Theorie ist offenbar in der Lage, die entsprechende Variation der Winkelverteilungen in Übereinstimmung mit den Experimenten wiederzugeben.

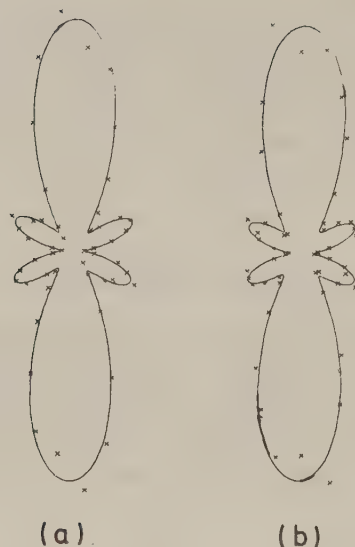
### 8.3. Winkelverteilungen mit Pikosekunden-Laserpulsen

Die Winkelverteilung in Abb. 25 wurde mit Laserpulsen der Länge von  $\Delta t \approx 1$  ps aufgenommen, die von dem Laserpulsverstärker verstärkt wurden. Die Dauer der verstärkten Pulse konnte wegen ihrer geringen Wiederholrate nicht bestimmt werden, sollte aber von der gleichen Größenordnung sein. Für die Fourier-begrenzte Linienbreite  $\Delta\nu$  der Pulse sollte dann gelten :

$$\Delta\nu \approx \frac{1}{2\pi \Delta t}$$

Selbst wenn die Pulse um einen Faktor 10 länger sein sollten, wäre ihre Linienbreite immer noch um einen Faktor 10 größer als die Fein- und Hyperfeinstrukturabstände der beteiligten Zustände. Die Winkelverteilung in Abb. 25 ist also charakteristisch für einen Übergang  $3S \rightarrow 4D \rightarrow$  Kontinuum. In Abb. 27 ist diese Winkelverteilung im Vergleich zu derjenigen dargestellt, die mit Nanosekundenpulsen bei höchster Intensität, aber mit Abstimmung auf die Resonanz  $3^2S_{1/2}(F=2) \rightarrow 4^2D_{5/2}$  aufgenommen wurde (letzte Winkelverteilung aus der Abb. 24b). Man sieht, daß sich durch den dynamischen Stark-Effekt die Winkelverteilungen des ursprünglich aufgelösten Übergangs derjenigen nähern, bei der die Feinstruktur des ursprünglich resonanten Zwischenzustands nicht mehr aufgelöst wird, weil er aus der Resonanz geschoben wird. In Tabelle 5 sind zum Vergleich die Parameter  $a_{2n}$  für die beiden Winkelverteilungen aus Abb. 27 angegeben.

Die Ähnlichkeit der beiden Winkelverteilungen legt außerdem die Vermutung nahe, daß sich möglicherweise bei hohen Intensitäten der ganze Ionisationsprozeß schon in Zeiten abspielt, die klein gegen die Laserpulsdauer von 6 ns sind.



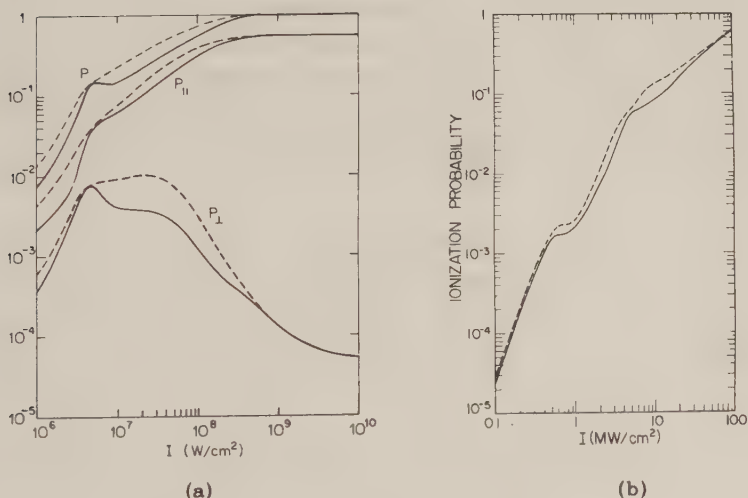
**Abb. 27 :** Experimentelle Winkelverteilungen ohne Auflösung der Feinstruktur des 4D-Zustands. (a) mit Pikosekunden-Laserpulsen (prinzipiell keine Auflösung möglich). (b) bei Abstimmung auf  $4^2D_{5/2}$ , aber bei sehr hohen Intensitäten (keine Auflösung durch dynamische Stark-Verschiebung).

**Tabelle 5 :** Vergleich der experimentell bestimmten Koeffizienten  $a_{2n}$  für Winkelverteilungen, die mit Pikosekunden-Laserpulsen (a) aufgenommen wurden, mit denen, die nach Abstimmung auf den ungestörten  $4^2D_{5/2}$  Zustand bei 530 MW/cm<sup>2</sup> (b) aufgenommen wurden. Die Zahlen in Klammern geben den absoluten Fehler in den letzten beiden Stellen an.

|     | $a_2/a_0$ | $a_4/a_0$ | $a_6/a_0$ |
|-----|-----------|-----------|-----------|
| (a) | 0,858(15) | 0,592(15) | 0,574(15) |
| (b) | 0,854(27) | 0,568(26) | 0,508(26) |

#### 8.4. Messung der Winkelverteilungen im Vergleich zur Messung der totalen Ionisationsrate

Sowohl Dixit und Lambropoulos<sup>38)</sup> als auch Geltman und Leuchs<sup>40)</sup> haben den Verlauf der totalen Ionisationsrate in Abhängigkeit von der Laserintensität für die hier untersuchte Mehrphotonenionisation ausgerechnet (siehe Abb. 28). Es zeigen sich Differenzen im Bereich niedriger Intensitäten, die möglicherweise von der unterschiedlichen Berechnung der totalen Ionisationsraten herrühren<sup>40)</sup>. Offenbar sind bereits bei unterschiedlichen Berechnungsweisen die absoluten Intensitätsskalen nicht leicht in Einklang zu bringen. Das generelle Verhalten der



**Abb. 28 :** Theoretische Ionisationswahrscheinlichkeiten über der Laserintensität :  
 (a) nach 38),  $P_{\parallel}$  gibt die Ionisationswahrscheinlichkeit parallel zur Laserpolarisation an,  $P_{\perp}$  diejenige senkrecht dazu und  $P$  deren Summe.  
 Durchgezogene Kurve : monochromatisches Licht.  
 Gestrichelte Kurve : Laserlinienbreite 60 MHz .  
 Abstimmung immer auf den  $4^2D_{5/2}$ -Zustand.  
 (b) Nach 40), gestrichelte Kurve : Abstimmung auf  $3^2S_{1/2}(F=2) \rightarrow 4^2D_{3/2}$  , durchgezogene Kurve : Abstimmung auf  $3^2S_{1/2}(F=1) \rightarrow 4^2D_{5/2}$  .

Ionisationsraten ist bei beiden jedoch gleich und zeigt vor allem, daß Einflüsse des dynamischen Stark-Effekts sich nur in sehr schwachen Schultern der Kurven bemerkbar machen. Generell ist die experimentelle Bestimmung von absoluten Ionisationsraten großen Fehlern unterworfen: Schwankungen der Dichte des Atomstrahls können Änderungen der Ionisationsrate vortäuschen. Eine Erhöhung der Laserintensität führt zu einer Vergrößerung des Wechselwirkungsvolumens, so daß eine stärkere Erhöhung der Ionisationsrate vorgespiegelt wird, als sie durch ein Ansteigen der Intensität hervorgerufen werden kann.

Es ist daher fraglich, ob eine experimentell bestimmte absolute Ionisationsrate überhaupt so viele Details wie die Kurven in Abb. 27 zeigen könnte. Die Unsicherheiten wären sicherlich wesentlich größer als bei den Winkelverteilungen, so daß der Einfluß des dynamischen Stark-Effekts kaum sichtbar wäre. Die vorliegenden Messungen der Winkelverteilungen hingegen zeigen dessen Auswirkungen deutlich und eindeutig. Hieran sieht man, welchen entscheidenden Vorteil die Untersuchung der Winkelverteilungen in der Mehrphotonenionisation haben kann.

## Schluß

In dieser Arbeit wurde ein Experiment vorgestellt, in dessen Rahmen verschiedene Prozesse in der Mehrphotonenionisation detailliert studiert wurden. Das gepulste Lasersystem erlaubt eine Auflösung, die besser als 200 MHz ist, und kommt damit der prinzipiell erreichbaren Auflösung für Laser mit Nanosekunden-Pulsen nahe. Zusammen mit der Atomstrahlmethode und dem Nachweis einzelner Elektronen läßt sich mit einem derartigen experimentellen Aufbau eine Präzision in der Untersuchung von Mehrphotonenprozessen erreichen, die einen quantitativen Vergleich mit der Theorie zuläßt.

Mit der Messung von Winkelverteilungen der Photoelektronen konnte in Verbindung mit dem hochauflösenden Lasersystem die Verschiebung von resonanten Zwischenzuständen unter dem Einfluß der Laserintensität deutlich herauspräpariert werden. Daraus ist ersichtlich, daß entscheidende Information über den Prozeß der Mehrphotonenionisation aus den Winkelverteilungen gewonnen werden kann, die auf anderem Wege nur schwer oder gar nicht erhalten werden könnte.

Beim Vergleich von Experiment und Theorie zeigt sich, daß das Wechselspiel der verschiedenen Mehrphotonenprozesse - mit dem dynamischen Stark-Effekt im Vordergrund - im Wesentlichen richtig wiedergegeben wird. Diskrepanzen bestehen offensichtlich in den absoluten Intensitätsskalen. Auf der experimentellen Seite könnte noch die Form der Pulse des Nd:YAG-Lasers verbessert werden. Dazu wären vor allem technische Änderung der Pumpgeometrie der Nd:YAG-Stäbe und eine schnellere Ansteuerung des Güteschalters notwendig. Außerdem wäre an eine Stabilisierung des Farbstoff-Ringlasers direkt auf den jeweils gewünschten atomaren Übergang zu denken. Andererseits könnte in der Theorie der Versuch unternommen werden, auch kompliziertere Laserpulsformen zu berücksichtigen. Es bliebe aber immer noch eine restliche Unsicherheit über die tatsächliche Größe und Verteilung der Laserintensität in der Wechselwirkungsregion bestehen.

In vielen Mehrphotonen-Experimenten mag die absolute Intensitätskala keine wesentliche Rolle spielen. Die vorliegende Arbeit demonstriert aber, daß unter dem Einfluß der Laserintensität Effekte auftreten, die anderen Beobachtungsmethoden verborgen blieben, aber von entscheidender Bedeutung sein können. Man denke nur an Analyse- oder Trennverfahren, die von einer genauen Kenntnis der tatsächlichen Lage der Energiezustände abhängen. Bei diesen wird mindestens eine Laserfrequenz auf einen resonanten Zwischenzustand abgestimmt, so daß lediglich die gesuchte Substanz effektiv ionisiert wird. Teilchen mit ähnlichem Termschema, wie zum Beispiel andere Isotope, werden solange nicht ionisiert, als sie nicht auch in Resonanz mit dem Laserlicht geraten. Eine dynamische Stark-Verschiebung, wie sie in der vorliegenden Arbeit demonstriert wurde, könnte aber bei bestimmten Intensitäten andere Atomsorten in Resonanz bringen und daher eine eindeutige Zuordnung der Substanzen zur Laserfrequenz erschweren. Es gibt also Fälle, in denen die Intensitätsabhängigkeit von eventuell störenden Effekten auf einer absoluten Skala bekannt sein muß. Diese Arbeit zeigt, daß eine experimentelle Bestimmung dieser Skala unerlässlich ist, und stellt dazu eine mögliche experimentelle Methode vor.

## Literaturnachweis

- 1) H.A.Kramers, W.Heisenberg : Z.Phys. 31, 681 (1925)
- 2) M.Göppert-Mayer : Ann.d.Phys. 9, 273 (1931)
- 3) V.Hughes, L.Grabner : Phys.Rev. 79, 829 (1950)
- 4) G.S.Voronov, N.B.Delone : Sov.Phys.JETP Lett. 1, 66 (1965)
- 5) P.S.Epstein : Ann.d.Phys. 50, 489 (1916)  
K.Schwarzschild : Sitz-ber.Berl.Akad.Wiss. 1916, 548
- 6) P.Avan, C.Cohen-Tannoudji, J.Dupont-Roc, C.Fabre :  
J. de Phys.(Paris) 9, 993 (1976)
- 7) Einen Überblick über erste theoretische und experimentelle Untersuchungen liefern A.M.Bonch-Bruevich, V.A.Khodovoi :  
Usp.Fiz.Nauk 93, 71 (1967) [ Sov.Phys.Usp. 10, 637 (1968) ]
- 8) M.P.Strand, J.Hansen, R.-L.Chien, R.S.Berry :  
Chem.Phys.Lett. 59, 205 (1978) und  
J.C.Hansen, J.A.Duncanson, R.-L.Chien, R.S.Berry :  
Phys.Rev.A 21, 222 (1980)
- 9) H.Kaminski, J.Kessler, K.J.Kollath :  
Phys.Rev.Lett. 45, 1161 (1980)
- 10) A.Siegel, J.Ganz, W.BuBert, H.Hotop : J.Phys.B 16, 2945 (1983)
- 11) R.-L.Chien, O.C.Mullins, R.S.Berry :  
Phys.Rev.A 28, 2078 (1983)
- 12) G.Leuchs, S.J.Smith, E.Khawaja, H.Walther :  
Opt.Comm. 31, 313 (1979)
- 13) D.Feldmann, K.H.Welge : J.Phys.B 15, 1651 (1982)
- 14) E.Matthias, P.Zoller, D.S.Elliott, N.D.Piltch, S.J.Smith,  
G.Leuchs : Phys.Rev.Lett. 50, 1914 (1983)
- 15) G.Leuchs, S.J.Smith, S.N.Dixit, P.Lambropoulos :  
Phys.Rev.Lett. 56, 708 (1986)
- 16) F.Fabre, P.Agostini, G.Petite, M.Clement :  
J.Phys.B 14, L677 (1981)
- 17) R.Hippler, H.-J.Humpert, H.Schwieger, S.Jetzke, H.O.Lutz :  
J.Phys.B 16, L713 (1983)  
H.-J.Humpert, R.Hippler, H.Schwieger, H.O.Lutz : in "Fundamental Processes in Atomic Collision Physics" (1984), Plenum Press, New York (1985)

- 18) A.Dodhy, R.N.Compton, J.A.D.Stockdale :  
Phys.Rev.Lett. 54, 422 (1985)
- 19) G.Leuchs, G.Alber, S.J.Smith : "Laser Spectroscopy VII",  
T.W.Hänsch, Y.R.Shen (Hrsg.), Springer Verlag, Berlin, Heidelberg,  
New York, Tokyo (1985), p.216
- 20) A.T.Georges, P.Lambropoulos : Phys.Rev.A 15, 727 (1977)
- 21) P.Agostini, F.Fabre, G.Mainfray, G.Petite, N.K.Rahman :  
Phys.Rev.Lett. 42, 1127 (1979)
- 22) P.Kruit, J.Kimman, M.J.van der Wiel : J.Phys.B 14, L579 (1981)
- 23) P.Kruit, J.Kimman, H.G.Muller, M.J.van der Wiel :  
Phys.Rev.A 28, 248 (1983)
- 24) R.Loudon : "The Quantum Theory of Light", Clarendon Press,  
Oxford (1973)
- 25) S.J.Smith, P.B.Hogan : "Laser Spectroscopy IV", H.Walther,  
K.W.Rothe (Hrsg.), Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New  
York (1979), p.360
- 26) P.Agostini, A.T.Georges, S.E.Wheatley, P.Lambropoulos,  
M.D.Levenson : J.Phys.B 11, 1733 (1978)
- 27) L.-A.Lompré, G.Mainfray, C.Manus, J.P.Marinier :  
J.Phys.B 14, 4307 (1981)
- 28) J.Stark : Berl.Akad.Wiss. 40, 932 (1913)  
Ann.d.Phys. 43, 965 (1919)
- 29) S.H.Autler, C.H.Townes : Phys.Rev. 100, 703 (1955)
- 30) E.Moody, M.Lambropoulos : Phys.Rev.A 15, 1497 (1977)
- 31) W.Bothe : Z.Phys. 26, 59 (1924)
- 32) J.Berkowitz, H.Ehrhardt : Phys.Lett. 21, 531 (1966)
- 33) H.A.Bethe, E.E.Salpeter : "Quantum Mechanics of One- and Two-  
Electron Atoms", Plenum Press, New York (1957)
- 34) S.Edelstein, M.Lambropoulos, J.Duncanson, R.S.Berry :  
Phys.Rev.A 9, 2459 (1974)
- 35) T.Hellmuth, G.Leuchs, S.J.Smith, H.Walther : "Lasers and  
Applications", W.O.N.Guimareas, C.-T.Lin, A.Mooradian (Hrsg.),  
Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York (1981), p.194
- 36) G.Leuchs, S.J.Smith : J.Phys.B 15, 1051 (1982)

- 37) D.Pritchard, J.Apt, T.W.Ducas : Phys.Rev.Lett. 32, 641 (1974);  
 J.C.Bjorkholm, P.F.Liao : Phys.Rev.Lett. 33, 128 (1974);  
 B.Burghardt, M.Dubke, W.Jitschin, G.Meisel :  
 Phys.Lett 69A, 93 (1978)
- 38) S.N.Dixit, P.Lambropoulos : Phys.Rev.Lett. 46, 1278 (1981)
- 39) S.N.Dixit, P.Lambropoulos : Phys.Rev.A 27, 861 (1981)
- 40) S.Geltman, G.Leuchs : Phys.Rev.A 31, 1463 (1985)
- 41) F.Diedrich : Diplomarbeit, Ludwig-Maximilians-Universität München (1982)
- 42) T.W.Hänsch, K.Harvey, G.Meisel, A.L.Schawlow :  
 Opt.Commun. 11, 50 (1974)



Mein Dank gilt Herrn Prof. Dr. H. Walther, der die Anregung zu dieser Arbeit gab und ihre Durchführung in vielfältiger Weise unterstützte und förderte.

Herrn Priv. Doz. Dr. G. Leuchs möchte ich dafür danken, daß er mir mit Rat und Tat aus seinem Erfahrungsschatz zur Seite stand. Ich habe manches von ihm gelernt.

Herrn Dr. D. Elliott danke ich für die hilfreiche Zusammenarbeit während seines Gastaufenthalts am Lehrstuhl.

Bei allen Mitgliedern des Lehrstuhls, die mir bei verschiedenen Gelegenheiten geholfen haben, möchte ich mich herzlich bedanken.

Mit besonderem Dank wende ich mich an die Mitglieder der mechanischen Werkstatt unter der Leitung von Herrn W. Grotz und Herrn H. Rauch. Es ist gar nicht möglich, alle Gelegenheiten aufzuzählen, bei denen sie mir durch tatkräftige und schnelle Unterstützung in steter humorvoller Bereitschaft geholfen haben.

Auch den Mitgliedern der elektronischen Werkstatt sei hier für ihre Hilfsbereitschaft und Unterstützung gedankt.

Diese Arbeit wurde teilweise von der Deutschen Forschungsgemeinschaft gefördert, der ich dafür danken möchte.



### Lebenslauf :

Name : Wolfgang Ohnesorge  
Geburtsdatum : 22. September 1955  
Geburtsort : Göttingen  
Staatsangehörigkeit : deutsch  
Familienstand : ledig  
Eltern : Dr. Bernhart Ohnesorge  
Dr. Erika Ohnesorge, geb. Gallasch

### Ausbildungsweg :

1961 - 1965      Grundschule in Berlin-Grunewald  
1965 - 1974      Humanistisches Gymnasium in Berlin und in Stuttgart  
1974 - 1975      Grundwehrdienst  
1975 - 1977      Physikstudium an der Technischen Universität Stuttgart  
1977              Vordiplom in Physik in Stuttgart  
1977 - 1982      Physikstudium an der Ludwig-Maximilians-Universität  
                  in München  
1982              Diplom in Physik in München  
1982 - 1986      Promotionsstudium an der Ludwig-Maximilians-Universität  
                  in München

### Berufliche Tätigkeit :

1982 - 1983      wissenschaftlicher Mitarbeiter, Förderung durch die  
                  Deutsche Forschungsgemeinschaft  
ab 1983           wissenschaftlicher Mitarbeiter an der Sektion Physik  
                  der Ludwig-Maximilians-Universität in München









